



Docket No. 218141US0/vdm

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Matthias KRONER, et al.

GAU: 1713

SERIAL NO.: 10/044,948

EXAMINER:

FILED: January 15, 2002

FOR: COMPOSITIONS FOR PRODUCING MOLDINGS FROM FINELY DIVIDED MATERIALS

REQUEST FOR PRIORITY

ASSISTANT COMMISSIONER FOR PATENTS  
WASHINGTON, D.C. 20231

SIR:

- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Application Serial Number [US App No], filed [US App Dt], is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §120.
- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Provisional Application Serial Number , filed , is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119(e).
- ☒ Applicants claim any right to priority from any earlier filed applications to which they may be entitled pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119, as noted below.

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:

<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NUMBER</u>	<u>MONTH/DAY/YEAR</u>
GERMANY	101 01 944.0	January 17, 2001

Certified copies of the corresponding Convention Application(s)

- ☒ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee
- ☐ were filed in prior application Serial No. filed
- ☐ were submitted to the International Bureau in PCT Application Number .  
Receipt of the certified copies by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.
- ☐ (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. filed ; and  
(B) Application Serial No.(s)
  - ☐ are submitted herewith
  - ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

Respectfully Submitted,

William E. Beaumont

Registration Number 30,996

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,  
MAIER & NEUSTADT, P.C.

  
Norman F. Oblon

Registration No. 24,618



22850

Tel. (703) 413-3000  
Fax. (703) 413-2220  
(OSMMN 10/98)

#2  
RECEIVED  
MAR 06 2002  
TC 1700  
priority papers  
DR.  
07-30-02

10/044,948

# BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND



## Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

RECEIVED  
MAR 06 2002  
TC 1/00

**Aktenzeichen:** 101 01 944.0

**Anmeldetag:** 17. Januar 2001

**Anmelder/Inhaber:** BASF Aktiengesellschaft,  
Ludwigshafen/DE

**Bezeichnung:** Zusammensetzungen für die Herstellung von  
Formkörpern aus feinteiligen Materialien

**IPC:** C 09 D, C 08 J, D 04 H

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 24. Januar 2002  
Deutsches Patent- und Markenamt  
Der Präsident  
Im Auftrag

Jerofsky

Zusammensetzungen für die Herstellung von Formkörpern aus feinteiligen Materialien

## 5 Beschreibung

Die vorliegende Erfindung betrifft die Verwendung von Zusammensetzungen, die Umsetzungsprodukte von niedermolekularen Di oder Tricarbonsäuren mit Ammoniak enthalten, zur Herstellung von Formkörpern aus feinteiligen Materialien.

Die Herstellung von Formkörpern aus feinteiligen Materialien wie Faserplatten oder Spanplatten etc. sowie die Herstellung von Flächengebilden aus Fasermaterialien, beispielsweise Faservliesen, Fasermatten, erfolgt häufig unter Verwendung eines polymeren Bindemittels. Zur Erhöhung der Festigkeit, insbesondere der Nass- und Wärmestandfestigkeit, werden vielfach Bindemittel eingesetzt, welche Formaldehyd abspaltende Vernetzer enthalten. Bindemittel auf Basis von Phenol-Formaldehydharzen sind beispielsweise aus der US 4,612,224 bekannt. Die WO 94/20661 beschreibt vernetzbare Dispersionspulver und deren Verwendung als Bindemittel für Fasern, welche als vernetztende Komponente N-Methylolamid-Gruppen aufweisen. Beim Vernetzen setzen diese Gruppen Formaldehyd frei.

Bindemittelbedingte Formaldehydmissionen sind jedoch nicht zuletzt aus arbeitshygienischen Gründen problematisch. Zur Vermeidung der Formaldehyd-Emissionen wurden bereits zahlreiche Alternativen vorgeschlagen. So sind aus der US 4,076,917 Bindemittel bekannt, welche Carbonsäure- oder Carbonsäureanhydrid-haltige Polymerisate und  $\beta$ -Hydroxyalkylamide als Vernetzter enthalten. Nachteilig ist die aufwendige Herstellung der  $\beta$ -Hydroxyalkylamide. Ähnliche Bindemittel sind aus der EP-A 583 086 bekannt.

Aus der EP-A 445 578 sind Platten aus feinteiligen Materialien wie Glasfasern bekannt, die als Bindemittel eine Zusammensetzung aus hochmolekularen Polycarbonsäuren und mehrwertigen Alkoholen, Alkanolaminen und/oder mehrwertigen Aminen enthalten. Die Wasserfestigkeit der erhaltenen Platten ist jedoch nicht zufriedenstellend.

40

45 NAE 527/2000 KSc/135 16.01.2001

## 2

Die WO 99/09100 beschreibt die Verwendung von thermisch härtbaren wässrigen Zusammensetzungen, die wenigstens ein Polymerisat mit geringem Säuregruppen-Anteil, ein Säuregruppen-reiches Polymerisat und wenigstens ein Alkanolamin mit zwei Hydroxylgruppen enthalten, als Bindemittel für Formkörper.

Die WO 99/02591 beschreibt thermisch härtbare Zusammensetzungen, die ein in Gegenwart eines Carboxylgruppen-reichen Polymerisats hergestelltes Polymerisat mit geringem Säuregruppenanteil und ein oberflächenaktives Amin enthalten, und deren Verwendung als Bindemittel für Formkörper.

Bei den Formaldehyd-freien Bindemittelsystemen des Standes der Technik handelt es sich regelmässig um Polymersysteme. Diese weisen in der Regel eine hohe Verarbeitungsviskosität auf was bei der Herstellung von Formkörpern aus feinteiligen Materialien oftmals eine gleichmässige Einmischung der Bindemittel in das zu bindende Substrat erschwert und beim Formungsvorgang zu Inhomogenitäten und damit zu einer geringeren mechanischen Festigkeit des Formkörpers führt. Ausserdem sind diese Bindemittelsysteme vergleichsweise kostspielig, da die Polymerkomponente in der Regel einen zusätzlichen Herstellungsschritt erfordert.

Aus der WO 94/15993 ist die Herstellung von Polymeren der Asparaginsäure durch thermische Kondensation von Halbamiden der Fumarsäure, der Maleinsäure oder von Ammoniumsalzen der Halbamide dieser Säuren bekannt. Aus der WO 95/02007 ist bekannt, dass die zur Herstellung der Asparaginsäure-Polymere benötigten Halbamide und deren Ammoniumsalze in situ durch Umsetzung der Säureanhydride mit einer Ammoniak liefernden Komponente hergestellt werden können.

Der vorliegenden Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Bindemittelsystem für feinteilige Materialien bereitzustellen, das bei der Verarbeitung nicht zu Formaldehyd-Emissionen führt, das kostengünstig ist und mit dem Formkörper oder verfestigte Flächengebilde aus Fasermaterialien hergestellt werden können.

Überraschenderweise wird diese Aufgabe gelöst durch Zusammensetzungen, die ein Umsetzungsprodukt aus einer Di- oder Tricarbonsäure oder deren Anhydrid mit Ammoniak und gegebenenfalls einem primären Amin und/oder einer Verbindung mit wenigstens zwei Hydroxylgruppen, bzw. als Vorläufer dieses Umsetzungsprodukts, eine Mischung dieser Di- oder Tricarbonsäure oder deren Anhydrid mit einer Substanz, welche beim Erwärmen Ammoniak freisetzt, enthalten.

## 3

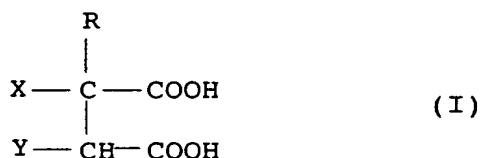
Demnach betrifft die vorliegende Erfindung die Verwendung von Zusammensetzungen, die

- wenigstens ein Umsetzungsprodukt aus

5

- i. wenigstens einer Polycarbonsäure der allgemeinen Formel I:

10



worin

15

- R für Wasserstoff oder eine Gruppe  $\text{CH}_2\text{COOH}$  steht,
- X OH oder  $\text{NH}_2$  bedeutet, wenn Y für Wasserstoff steht,
- Y OH oder  $\text{NH}_2$  bedeutet, wenn X für Wasserstoff steht,
- oder
- X und Y gemeinsam für eine  $\pi$ -Bindung stehen,

20

und/oder einem Anhydrid der Polycarbonsäure I mit

- ii. Ammoniak und gegebenenfalls

25

- iii. primären Aminen und/oder Verbindungen mit wenigstens zwei Hydroxylgruppen; und/oder

- eine Mischung aus wenigstens einer Polycarbonsäure der allgemeinen Formel I und/oder ihrem Anhydrid und wenigstens einer beim Erwärmen Ammoniak freisetzenden Substanz und gegebenenfalls primären Aminen und/oder Verbindungen mit wenigstens zwei Hydroxylgruppen;

30

enthalten, als termisch härtbares Bindemittel zur Herstellung von Formkörpern aus feinteiligen Materialien und zum Verfestigen von Flächengebilden aus Fasermaterialien.

35

Die Erfindung betrifft auch ein Verfahren zur Herstellung von Formkörpern aus feinteiligen Materialien und von verfestigten Flächengebilden aus Fasermaterialien unter Verwendung dieser Zusammensetzungen. Die Erfindung betrifft ausserdem die nach diesen Verfahren erhältlichen Formkörper und Flächengebilde. Die Erfindung betrifft weiterhin thermisch härtbare Zusammensetzung, die neben den vorgenannten Bestandteilen wenigstens einen weiteren Bestandteil enthalten, der ausgewählt ist unter feinteiligen Polymerisaten ethylenisch ungesättigter Monomere, Verbindungen mit

40

45

## 4

wenigstens zwei Hydroxylgruppen und wasserlöslichen Homo- und Copolymeren der Acrylsäure und/oder der Methacrylsäure.

Erfindungsgemäss geeignet sind grundsätzlich alle denkbaren Umsetzungsprodukte der Polycarbonsäure I oder ihres Anhydrids mit Ammoniak. Zu diesen Umsetzungsprodukten zählen sowohl die Mono-Bis- und Trisamide der Polycarbonsäuren I, in denen eine (Halbamide), zwei oder alle Carboxylgruppen in Carboxamid-Gruppen umgewandelt wurden. Hierzu zählen auch die Mono-, Bis- und Trisammoniumsalze der Polycarbonsäuren I sowie die Mono- und Bisammoniumsalze der Mono- bzw. Bisamide von I. Geeignete Polycarbonsäuren I sind die ungesättigten Di- und Tricarbonsäuren: Maleinsäure, Fumarsäure und Aconitsäure; die Hydroxygruppen-tragenden Di- und Tricarbonsäuren: Äpfelsäure und Zitronensäure; sowie die Aminogruppen-tragende Dicarbonsäure: Asparaginsäure. Geeignete Anhydride sind die intramolekularen Anhydride von I, beispielsweise Maleinsäureanhydrid.

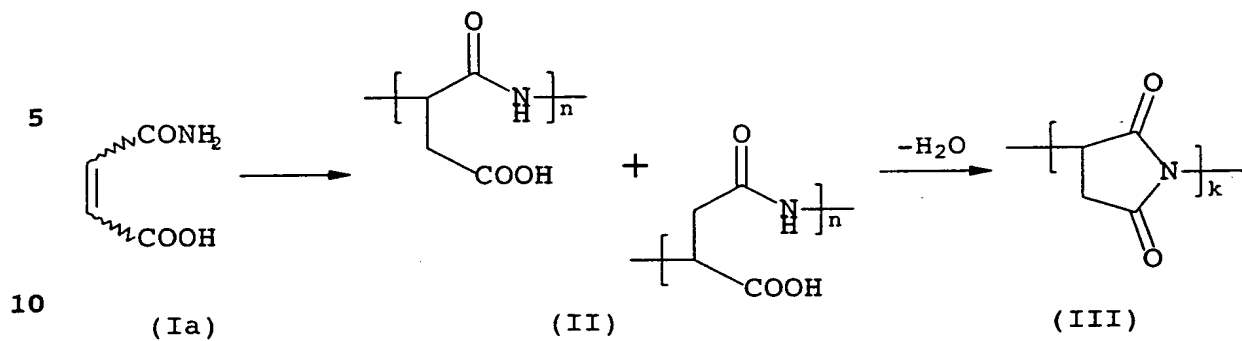
Man nimmt an, ohne die Erfindung durch eine Theorie einschränken zu wollen, dass die oben definierten Zusammensetzungen beim Erwärmen analog den in der EP-B 677 080, S. 4 und 5 gezeigten Schemata zu Oligomeren bzw. Polymeren mit Amid- und oder cyclischen Imidgruppen kondensieren. Letztere sind vermutlich für die Festigkeit der Formkörper und Flächengebilde verantwortlich. Es wird vermutet, dass beim Erwärmen zunächst eine Polymerisation der Halbamide der ethylenisch ungesättigten Polycarbonsäuren Ia (Halbamid der Polycarbonsäuren I, in denen X und Y gemeinsam für eine  $\pi$ -Bindung stehen) stattfindet, bei der der Stickstoff der Amidgruppe an die ethylenisch ungesättigte Doppelbindung von Ia addiert. Das dabei zunächst entstehende Oligomer mit Amid-Strukturelementen II reagiert bei verlängerter Wärmeeinwirkung und/oder Erhöhung der Temperatur unter intramolekularer Kondensation zu einem Polymer mit cyclischen Imid-Gruppen III. Die intramolekulare Kondensation beginnt in der Regel bei Temperaturen oberhalb 120°C vorzugsweise oberhalb 130°C und findet in verstärktem Ausmass bei Temperaturen ab 140°C, insbesondere ab 150°C und besonders bevorzugt ab 160°C statt. Die Reaktion wird in Schema 1 am Beispiel der Reaktion eines ethylenisch ungesättigten Dicarbonsäure-Halbamids Ia veranschaulicht.

40

45

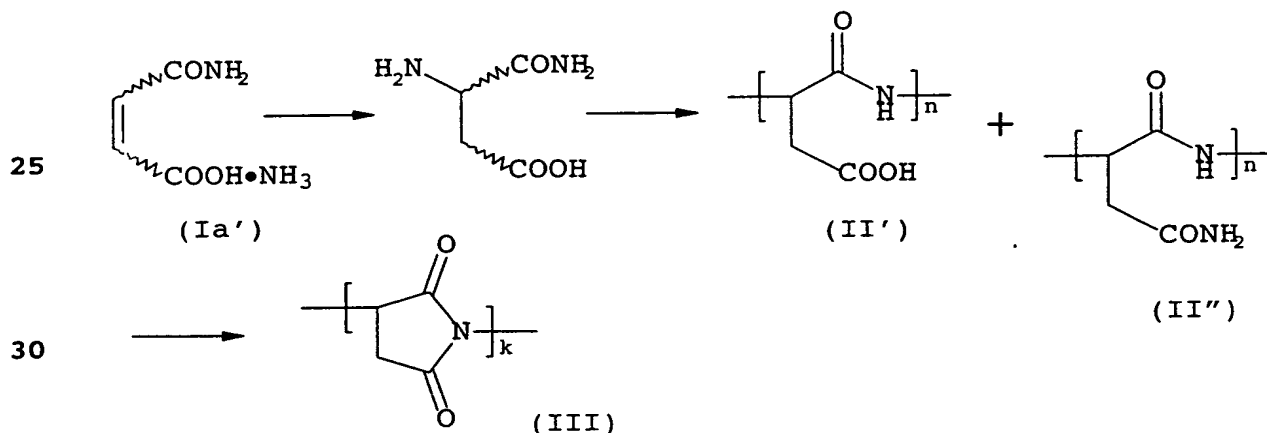
5

Schema 1:



In ähnlicher Weise polymerisieren auch die Ammoniumsalze der Halbamide, wie in Schema 2 am Beispiel des Ammoniumsalzes des Halbamids Ia' gezeigt wird. In Schema 1 und 2 stehen die Variablen n und k für die Anzahl der Wiederholungseinheiten im Oligomer und liegen bei den Oligomeren mit Struktureinheiten der Formeln II' bzw. II'' vorzugsweise im Bereich von 2 bis 100.

20 Schema 2:



Polymere, die im Wesentlichen aus den cyclischen Imid-Teilstrukturen (vgl. Formel III) aufgebaut sind, bilden vermutlich das eigentliche Bindemittel, wobei je nach Anwendungszweck auch Polymere geeignet sind, die überwiegend aus Strukturelementen der Formel II bzw. II' und/oder II'' aufgebaut sind, und/oder deren Polymerketten über diese Säure- bzw. Amidgruppen vernetzt sind.

Neben den Halbamiden und Amiden ethylenisch ungesättigter Polycarbonsäuren Ia sind auch Vorläufer dieser (Halb)amide geeignet, aus denen durch Abspaltung von Ammoniak oder Wasser die Halbamide der ethylenisch ungesättigten Polycarbonsäuren Ia freigesetzt werden, beispielsweise die Diammoniumsalze der ungesättigten Po-

## 6

lycarbonsäuren I oder die Halbamide sowie die (Di)Ammoniumsalze von Polycarbonsäuren I mit X oder Y = OH oder NH<sub>2</sub>.

Geeignet sind somit auch Mischungen der vorgenannten Polycarbon-  
5 säuren I, vorzugsweise ihrer Anhydride, mit Substanzen, welche beim Erwärmen Ammoniak freisetzen, da die Polycarbonsäuren I mit Ammoniak zu den Halbamiden und deren Ammoniumsalzen reagieren.

Erfindungsgemäss bevorzugt sind die Mono- und Diamide der Fumar-  
10 säure und der Maleinsäure, die Mono- und Diammoniumsalze der Fumarsäure und der Maleinsäure sowie die Monoamid-Ammoniumsalze der Maleinsäure und der Fumarsäure. Erfindungsgemäss bevorzugt sind auch Mischungen der Fumarsäure und/oder der Maleinsäure mit Substanzen, welche beim Erwärmen Ammoniak abgeben.

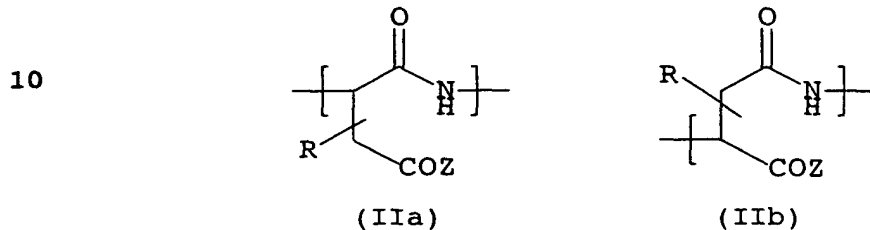
15 Die Amide, Halbamide und Ammoniumsalze der Polycarbonsäuren I sind dem Fachmann grundsätzlich bekannt und teilweise kommerziell erhältlich, oder können in Analogie zu Verfahren des Standes der Technik, wie sie beispielsweise aus US 5292858, Liebigs Ann.  
20 Chem. 259, S.138, JP-A 74/35325, der DE-A 4300020 oder der DE-A 4427631 bekannt sind, durch Umsetzung von I, vorzugsweise dem Anhydrid von I, mit Ammoniak hergestellt werden, wobei man entsprechend der Stöchiometrie dieser Reaktion in der Regel ein Molverhältnis von Ammoniak zu Polycarbonsäure von wenigstens 1:1,  
25 insbesondere 1:1 bis 2:1 bei Dicarbonsäuren I und 1:1 bis 3:1 bei Tricarbonsäuren, wählt.

Vorzugsweise erfolgt die Herstellung der Halbamide von I und ihrer Ammoniumsalze durch Umsetzung der Polycarbonsäuren I oder  
30 vorzugsweise der Anhydride der Polycarbonsäuren I mit Ammoniak in einem Lösungsmittel, insbesondere einem aliphatischen Keton wie Aceton, Ethylmethyleketon, Diethyleketon, Cyclopentanon oder Cyclohexanon, oder in Mischungen dieser Ketone untereinander oder mit Wasser, gemäss den Angaben der DE-A 4427631, oder durch Einwirken  
35 von gasförmigem Ammoniak auf die feste oder geschmolzene Polycarbonsäure I oder ihr Anhydrid gemäss der technischen Lehre der DE-A 4300020. Auf die Offenbarung der beiden Schriften wird hiermit Bezug genommen.

40 Als thermisch härtbares Bindemittel im Sinne der Erfindung kommen auch die oben beschriebenen wasserlöslichen Oligomere in Betracht, welches in der Regel durch Erwärmen eines Mono- oder Diamids, eines Mono- oder Diammoniumsalzes oder eines Monoamid-Ammoniumsalzes einer Polycarbonsäure der Formel I, vorzugsweise  
45 eines Monoamids, gegebenenfalls in Gegenwart eines primären Amins und/oder einer Verbindung mit wenigstens 2 OH-Gruppen erhältlich ist. Die erforderliche Temperatur zur Herstellung dieser Oligo-



mere wird in der Regel 160°C nicht überschreiten, da dann in verstärktem Masse die Bildung von Polymeren mit cyclischen Imidstrukturen auftritt, die nicht mehr wasserlöslich sind. Vorzugsweise lassen sich derartige Oligomere bei Temperaturen im Bereich von 120 bis 160°C herstellen. Diese Oligomere weisen in der Regel 2 bis 120 Wiederholungseinheiten der allgemeinen Formel IIa und/oder IIb auf,



15 worin R die zuvor genannten Bedeutungen hat und insbesondere für Wasserstoff steht und Z ausgewählt ist unter OH, OH•NH<sub>3</sub>, und NH<sub>2</sub>. Derartige Oligomere weisen in der Regel einen zahlenmittleren Oligomerisationsgrad im Bereich von 2 bis 120 vorzugsweise 3 bis 20 100 auf, was einem zahlenmittleren Molekulargewicht im Bereich von 250 bis 15000, vorzugsweise 350 bis 11000 und einem Gewichtsmittleren Molekulargewicht im Bereich von 500 bis 100000, vorzugsweise 600 bis 20000 entspricht.

25 Sofern man als thermisch härtbares Bindemittel eine Mischung aus wenigstens einer Polycarbonsäure der allgemeinen Formel I (bzw. dem Anhydrid von I) und wenigstens einer beim Erwärmen Ammoniak freisetzenden Substanz verwendet, setzt man diese in der Regel in einem Mengenverhältnis ein, dass das Molverhältnis von freigesetztem Ammoniak zur Polycarbonsäure I wenigstens 0,9:1, und maximal 3:1, insbesondere 1:1 bis 2:1 beträgt.

35 Substanzen, welche beim Erwärmen Ammoniak abgeben, sind dem Fachmann ebenfalls bekannt, z.B. aus der WO 95/02007, auf deren Offenbarung Bezug genommen wird. Zu den Substanzen, welche beim Erwärmen Ammoniak abgeben, zählen Säurederivate des Ammoniaks, welche Ammoniak in salzartig oder kovalent gebundener Form enthalten, sowie mit Ammoniak beladene Absorptionsmittel. Säurederivate des Ammoniaks sind die Säureadditionssalze mit Mineralsäuren wie 40 Ammoniumchlorid, Ammoniumsulfat, Diammoniumhydrogenphosphat, Säureadditionssalze mit schwachen Säuren wie Ammoniumacetat, Ammoniumformiat, Ammoniumoxalat und insbesondere die Ammoniak-Derivate der Kohlensäure wie Ammoniumhydrogencarbonat, Ammoniumcarbonat, Ammoniumcarbammat, weiterhin Harnstoff, N-Alkylharnstoff, Alkyl- 45 carbamate, Alkali- und Erdalkalicarbamate, Ammoniumcarbammat, Cyansäure, Cyanursäure, Ammoniumcyanat, Biuret, Acetylharnstoff, Guanidin, Guanidiniumnitrat, Guanidiniumhydrogencarbonat, Semi-

carbazid, Cyanamid, Calciumcyanamid, Dicyandiamid, Biguanid, Nitroguanidin, Aminoguanidin, Allophanate, Melamin, Amidinharnstoff, Cyanharnstoff und Thioharnstoff. Für die Beladung mit Ammoniak geeignete Absorbentien sind beispielsweise Aktivkohle, Aluminiumoxid, Kieselgel, saure Ionenaustauscher, die Chloride des Calciums, Kobalts, Zinks, Kieselgur, Kieselsäure, Wasserglas, Eisenhydroxid, Aluminiumhydroxid, Tonerde, Titandioxid, Eisenoxid, Zeolith und Bentonit. Geeignet sind weiterhin Verbindungen wie Urotropin, Formamid und Acetamid. Bevorzugte Substanzen sind Ammoniumhydrogencarbonat, Ammoniumcarbonat, Ammoniumcarbammat.

Mit Ammoniak beladene Absorbentien werden durch Überleiten von Ammoniak über geeignete Absorbentien erhalten. Geeignet sind beispielsweise Aktivkohle, Zeolith, Aluminiumhydroxid, Aluminiumoxid, Kieselgel, Kieselgur, Kieselsäure, Wasserglas-Gel, Ammoniumnitrat als Diverssche Flüssigkeit, saure Ionenaustauscher, Chloride von Calcium, Zink, und Cobalt, weiterhin Eisenhydroxid, Eisenoxid, Tonerden und Titandioxid.

20 Die Zusammensetzungen der vorliegenden Erfindung können als Pulver oder als Lösung, vorzugsweise als wässrige Lösung eingesetzt werden. Die Formulierungsform richtet sich dabei in erster Linie nach dem Anwendungszweck. Beispielsweise werden zur Verfestigung von Fasergebildenen die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen vorzugsweise als Lösungen, insbesondere als wässrige Lösungen, eingesetzt. Bei der Herstellung von Formkörpern aus feinteiligen Materialien können sowohl als Pulver als auch in Form von Lösungen eingesetzt werden.

30 Für Anwendung als Pulver sind als erfindungsgemäße Zusammensetzungen insbesondere die Amide und die Halbamide von Polycarbonsäuren I, sowie Mischungen aus Polycarbonsäuren und Substanzen, welche Ammoniak freisetzen, geeignet. Für die Anwendung in Lösung, vorzugsweise in wässrigen Lösungen werden die Ammoniumsalze der Polycarbonsäuren I und ihrer Halbamide, sowie die wasserlöslichen Oligomere mit Wiederholungseinheiten der Formeln IIa und IIb, vorzugsweise deren Ammoniumsalze ( $Z = OH \cdot NH_3$ ) bevorzugt.

Bei der Herstellung der Umsetzungsprodukte von der Polycarbonsäure I mit Ammoniak kann auch ein primäres Amin, d.h. eine Verbindung mit wenigstens einer  $NH_2$ -Gruppe zugegen sein. Ebenso können die Erfindungsgemäßen Zusammensetzungen ein primäres Amin enthalten. In der Regel wird jedoch der molare Anteil des primären Amins 30 Mol-%, bezogen auf die Polycarbonsäure I nicht überschreiten. Beispiele für primäre Amine sind Methylamin, Ethylamin, n-Propylamin, Isopropylamin, n-Butylamin, n-Hexylamin, Amioethanol, Aminopropanol, Cyclohexylamin, Ethylendiamin, Diethyl-

## 9

lendiamin und vergleichbare. Bevorzugte Ausführungsformen der erfindungsgemässen Zusammensetzungen enthalten keine primären Amine oder deren Umsetzungsprodukte mit Polycarbonsäuren I.

- 5 Die erfindungsgemäss verwendeten Zusammensetzungen können neben den vorgenannten Umsetzungsprodukten von Polycarbonsäuren mit Ammoniak auch eine Verbindung mit zwei oder mehreren Hydroxylgruppen und/oder deren Umsetzungsprodukte mit Polycarbonsäuren I enthalten.

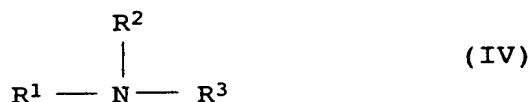
10

Als Verbindungen mit zwei oder mehr Hydroxylgruppen sind neben aliphatischen oder cycloaliphatischen Polyolen mit 2 oder mehr, z.B. 2, 3, 4 oder 5 Hydroxylgruppen, insbesondere Amine und Amide mit wenigstens zwei, z.B. 2, 3, 4, 5 oder 6 Hydroxy-C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl-

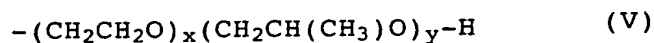
- 15 gruppen geeignet. Die Verbindungen mit wenigstens zwei Hydroxylgruppen können in den erfindungsgemässen Zusammensetzungen üblicherweise in einer Menge bis 50 Gew.-% vorzugsweise bis 30 Gew.-%, z.B. 1 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 3 bis 30 Gew.-%, bezogen auf das Umsetzungsprodukt aus Ammoniak und Polycarbonsäure  
20 (bzw. auf die äquivalente Menge aus Carbonsäure und Ammoniakfreisetzender Substanz) enthalten sein.

Beispiele für aliphatische und cycloaliphatische Di- oder Polyole sind Ethylenglykol, Propylenglykol, Butandiol, Hexandiol, Diethylenglykol, Triethylenglykol, Dipropylenglykol, Tripropylenglykol,  
25 Trimethylolpropan, Pentaerythrit und Dipentaerythrit sowie deren alkoxylierte weiterhin Polyethylenoxid, Polypropylenoxid Derivate insbesondere Amine der allgemeinen Formel IV

30



- wobei R<sup>1</sup> für ein H-Atom, eine C<sub>1</sub>-C<sub>20</sub>-Alkylgruppe, eine C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Hydroxyalkylgruppe oder einen Rest der Formel V  
35



- 40 steht, wobei in der Formel V die Reihenfolge der Alkylenoxideinheiten beliebig ist und x und y unabhängig voneinander für eine ganze Zahl von 0 bis 100 stehen, wobei die Summe aus x und y > 1 ist und R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> unabhängig voneinander für eine C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Hydroxyalkylgruppe stehen.

45

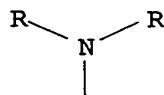
## 10

Besonders bevorzugt stehen  $R^2$  und  $R^3$  unabhängig voneinander für eine 2-Hydroxyethyl-, eine 2- oder 3-Hydroxypropyl- oder eine 2-, 3- oder 4-Hydroxybutylgruppe, und  $R^1$  für ein H-Atom, eine  $C_1$ - $C_6$ -Alkylgruppe, insbesondere für Methyl, Ethyl n- und iso-Propyl, oder eine  $C_2$ - $C_4$ -Hydroxyalkylgruppe.

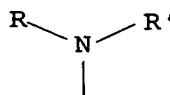
Besonders bevorzugte Verbindungen IV sind Diethanolamin, Triethanolamin, Diisopropanolamin, Triisopropanolamin, Methyldiethanolamin, Butyldiethanolamin und Methyldiisopropanolamin, insbesondere Triethanolamin, und die Alkoxylate davon.

Weitere geeignete Amine mit wenigstens 2 Hydroxyalkylgruppen sind die in der DE 196 21 573 als Komponente A offenbarten Amine, auf die hiermit Bezug genommen wird. Bei diesen Verbindungen handelt es sich um lineare oder verzweigte aliphatische Verbindungen, die pro Molekül mindestens zwei funktionelle Aminogruppen vom Typ (a) und/oder (b) aufweisen

20



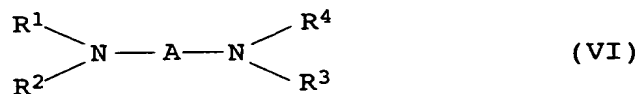
(a)



(b)

25 worin R für  $C_2$ - $C_4$ -Hydroxyalkyl steht und  $R'$  für  $C_1$ - $C_{20}$ -Alkyl steht. Bevorzugt handelt es sich um eine Verbindung der Formel VI

30



worin

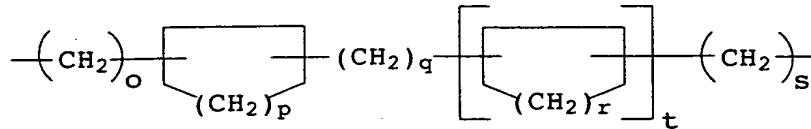
35 A für  $C_2$ - $C_{18}$ -Alkylen steht, das gegebenenfalls substituiert ist durch ein oder mehrere Gruppen, die unabhängig voneinander ausgewählt sind unter  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl,  $C_2$ - $C_4$ -Hydroxyalkyl,  $C_3$ - $C_7$ -Cycloalkyl, OH und  $NR^6R^7$ , wobei  $R^6$  und  $R^7$  unabhängig voneinander für H,  $C_2$ - $C_4$ -Hydroxyalkyl oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl stehen, und das gegebenenfalls unterbrochen ist durch ein oder mehrere Sauerstoffatome und/oder  $NR^5$ -Gruppen, wobei  $R^5$  für H, Hydroxyalkyl,  $(CH_2)_nNR^6R^7$ , wobei n für 2 bis 5 steht und  $R^6$  und  $R^7$  die oben angegebenen Bedeutungen besitzen, oder Alkyl, das seinerseits durch ein oder mehrere  $NR^5$ -Gruppen, wobei  $R^5$  die oben angegebenen Bedeutungen besitzt, unterbrochen und/oder 45 durch ein oder mehrere  $NR^6R^7$ -Gruppen substituiert sein kann,

11

wobei  $R^6$  und  $R^7$  die oben angegebenen Bedeutungen besitzen, steht;

oder A für einen Rest der Formel steht:

5



10

worin

$o$ ,  $q$  und  $s$  unabhängig voneinander für 0 oder eine ganze Zahl von 1 bis 6 stehen,

$p$  und  $r$  unabhängig voneinander für 1 oder 2 stehen und

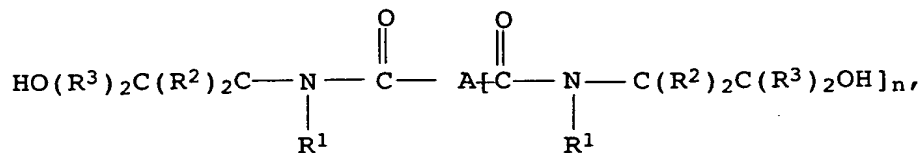
15  $t$  für 0, 1 oder 2 steht,

wobei die cycloaliphatischen Reste auch durch 1, 2 oder 3  $C_1$ - $C_4$ -Alkylreste substituiert sein können und

20  $R^1$ ,  $R^2$  und  $R^3$  und  $R^4$  unabhängig voneinander für H,  $C_2$ - $C_4$ -Hydroxyalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl oder  $C_3$ - $C_7$ -Cycloalkyl stehen.

Zu den Verbindungen mit wenigstens 2 Hydroxylgruppen zählen auch die in der US-5 143 582 genannten  $\beta$ -Hydroxyalkylamide der Formel

25



30

worin  $R^1$  Wasserstoff, eine kurzkettige Alkylgruppe oder

$\text{HO}(\text{R}^3)_2\text{C}(\text{R}^2)_2\text{---}$ ,  $n$  für 1, 2, 3 oder 4, vorzugsweise für 1 steht,

-A- ein  $n+1$ -wertiger, vorzugsweise zweiwertiger organischer Rest,

35 insbesondere eine  $\text{---}(\text{CH}_2)_m\text{---}$ -Gruppe, worin  $m$  für eine ganze Zahl von 0 bis 8, vorzugsweise von 2 bis 8 steht, bedeutet,  $R^2$  und  $R^3$  unabhängig voneinander Wasserstoff oder  $C_1$ - $C_5$ -Alkyl bedeuten wobei vorzugsweise alle Gruppen  $R^2$  und  $R^3$  für Wasserstoff stehen oder eine der  $R^2/R^3$ -Gruppen  $C_1$ - $C_5$ -Alkyl bedeutet und die übrigen40  $R^2/R^3$ -Gruppen Wasserstoff bedeuten. Besonders bevorzugt ist Bis[N,N-di(2-hydroxyethyl)]adipinsäureamid.

Ausserdem können die erfindungsgemässen Zusammensetzungen auch ein feinteiliges Polymerisat, beispielsweise in Form einer wässrigen Dispersion oder eines Polymerpulvers enthalten. Bei dem

## 12

feinteiligen Pulver handelt es sich in der Regel um ein radikalisiertes Emulsionspolymerisat oder ein daraus hergestelltes Pulver.

Das feinteilige Polymerisat kann in den erfindungsgemässen Zusammensetzungen üblicherweise in einer Menge bis 500 Gew.-%, z.B. 5 bis 500 Gew.-%, bezogen auf das Umsetzungsprodukt aus Ammoniak und Polycarbonsäure bzw. Anhydrid (bzw. auf die äquivalente Menge aus Carbonsäure bzw. Anhydrid und Ammoniak-freisetzender Substanz) enthalten sein.

10

Im Allgemeinen ist das feinteilige Polymerisat aufgebaut aus

- 80 bis 100 Gew.-%, bevorzugt 85 bis 99,9 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der das Polymerisat bildenden Monomere, wenigstens eines ethylenisch ungesättigten Hauptmonomeren sowie
- 0 bis 20 Gew.-%, bevorzugt 0,1 bis 15 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der das Polymerisat bildenden Monomere, wenigstens eines ethylenisch ungesättigten Comonomeren.

20

Bei dem Hauptmonomer handelt es sich in der Regel um ein monoethylenisch ungesättigtes Monomer oder um konjugierte Diolefine mit begrenzter Wasserlöslichkeit, die in der Regel weniger als 80 g/l, vorzugsweise weniger als 50 g/l, z.B. im Bereich von 0,1 bis 50 g/l (bezogen auf 25°C und 1 bar) beträgt.

Beispiele für Hauptmonomere sind:

- Ester aus vorzugsweise 3 bis 6 C-Atomen aufweisenden  $\alpha,\beta$ -monoethylenisch ungesättigten Mono- oder Dicarbonsäure, z.B. Ester der Acrylsäure, Methacrylsäure, Maleinsäure, Fumarsäure und Itaconsäure mit  $C_1$ - $C_{12}$ -, vorzugsweise  $C_1$ - $C_8$ -Alkanolen. Beispiele für derartige Ester sind insbesondere Methyl-, Ethyl-, n-Butyl-, Isobutyl-, tert-Butyl-, n-Pentyl-, iso-Pentyl- und 2-Ethylhexylacrylat und/oder -methacrylat;
- vinylaromatische Verbindungen wie Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, o-Chlorstyrol, Vinyltoluolen und Mischungen davon;
- Vinylester von  $C_1$ - $C_{18}$ -Mono- oder Dicarbonsäuren, wie Vinylacetat, Vinylpropionat, Vinyl-n-butytrat, Vinyl-laurat und/oder Vinylstearat;
- konjugierte Diene wie Butadien;

45

## 13

- lineare oder verzweigt-kettige 1-Olefine oder cyclischen Olefinen, z. B. Ethen, Propen, Buten, Isobuten, Penten, Cyclopenten, Hexen oder Cyclohexen;
- 5 - Acrylnitril, Methacrylnitril: Der Anteil an den Hauptmonomeren wird aufgrund der erhöhten Wasserlöslichkeit der Nitrile in der Regel 30 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtmonomermenge nicht überschreiten. Sofern erwünscht machen die Nitrile in der Regel 1 bis 30, vorzugsweise 2 bis 25 und insbesondere 5  
10 bis 20 Gew.-% der Gesamtmonomermenge aus.
- Vinyl- und Allylalkylether mit 1 bis 20, vorzugsweise 2 bis 10 Kohlenstoffatomen im Alkylrest, wobei der Alkylrest noch weitere Substituenten, wie eine oder mehrere Hydroxylgruppen,  
15 eine oder mehrere Amino- oder Diaminogruppen oder eine bzw. mehrere Alkoxyatgruppen tragen kann, wie z. B. Methylvinylether, Ethylvinylether, Propylvinylether und 2-Ethylhexylvinylether, Isobutylvinylether, Vinylcyclohexylether, Vinyl-4-hydroxybutylether, Decylvinylether, Dodecylvinylether, Octadecylvinylether, 2-(Diethylamino)ethylvinylether, 2-(Di-n-butyl-amino)ethylvinylether, Methyldiglykolvinylother sowie die  
20 entsprechenden Allylether bzw. deren Mischungen.

Besonders bevorzugte Hauptmonomere sind vinylaromatische Mono-  
25 mere, insbesondere Styrol, sowie Ester der Acrylsäure und Ester der Methacrylsäure mit C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkanolen, insbesondere Methylmethacrylat, n-Butylacrylat, Ethylacrylat, 2-Ethylhexylacrylat, weiterhin Vinylacetat, Ethen und Butadien.

30 Beispiele für geeignete Comonomere sind:

- monoethylenisch ungesättigten C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Mono- oder Dicarbonsäuren oder deren Anhydride, vorzugsweise Acrylsäure, Methacrylsäure, Methacrylsäureanhydrid, Maleinsäure, Maleinsäureanhydrid, Fumarsäure und/oder Itaconsäure;  
35
- Amide und N-Alkylamide der vorgenannten ethylenisch ungesättigten Carbonsäuren, wie Acrylamid, Methacrylamid, N,N-Dimethylacrylamid, N-tert.-Butylacrylamid, N-Methylmethacrylamid, N-Alkylolamide, insbesondere N-Hydroxymethyl- und N-Hydroxyethylamide monoethylenisch ungesättigter Monocarbonsäuren wie N-Methylolacrylamid und -methacrylamid.  
40
- sulfogruppenhaltige Monomere, wie z. B. Allylsulfonsäure, Methallylsulfonsäure, Styrolsulfonsäure, Vinylsulfonsäure, 2-Acrylamido-2-methylpropansulfonsäure, Allyloxybenzolsulfonsäure, deren entsprechenden Alkali- oder Ammoniumsalzen bzw.  
45

## 14

deren Mischungen sowie Sulfopropylacrylat und/oder Sulfopropylmethacrylat;

- 5 - C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Hydroxyalkylester von C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Mono- oder Dicarbonsäuren, insbesondere der Acrylsäure, Methacrylsäure oder Maleinsäure, oder deren mit 2 bis 50 Mol Ethylenoxid, Propylenoxid, Butylenoxid oder Mischungen davon alkoxylierten Derivate oder Ester von mit 2 bis 50 Mol Ethylenoxid, Propylenoxid, Butylenoxid oder Mischungen davon alkoxylierten C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-Alkoholen mit
- 10 den erwähnten Säuren, wie Hydroxyethylacrylat, Hydroxyethylmethacrylat, Hydroxypropylacrylat, Hydroxypropylmethacrylat, Butandiol-1,4-monoacrylat, Ethyldiglykolacrylat, Methylpolyglykolacrylat (11 EO), (Meth)acrylsäureester von mit 3, 5, 7, 10 oder 30 Mol Ethylenoxid umgesetztem C<sub>13</sub>/C<sub>15</sub>-Oxoalkohol bzw.
- 15 deren Mischungen;
  
- ethylenisch ungesättigte Phosphor- und Phosphonsäuren z.B. Vinylphosphonsäure und deren Salze, Vinylphosphonsäuredimethylester, Acryloxyethylphosphat, Acryloxyethylphosphonat,
- 20 2-Acrylamido-2-methylphosphonat und vergleichbare
  
- Alkylaminoalkyl(meth)acrylate oder Alkylaminoalkyl(meth)acrylamide oder deren Quarternisierungserzeugnisse, wie z. B. 2-(N,N-Dimethylamino)-ethyl(meth)acrylat oder 2-(N,N,N-Trimethylammonium)-ethylmethacrylat-chlorid, 3-(N,N-Dimethylamino)-propyl(meth)acrylat, 2-Dimethylamino-ethyl(meth)acrylamid, 3-Dimethylaminopropyl(meth)acrylamid, 3-Trimethylammoniumpropyl(meth)acrylamid-chlorid und Mischungen davon;
- 25
  
- 30 - Allylester von C<sub>1</sub>-C<sub>30</sub>-Monocarbonsäuren;
  
- N-Vinylverbindungen, wie N-Vinylformamid, N-Vinyl-N-methylformamid, N-Vinylpyrrolidon, N-Vinylimidazol, 1-Vinyl-2-methylimidazol, 1-Vinyl-2-methylimidazolin, 2-Vinylpyridin,
- 35 4-Vinylpyridin, N-Vinylcarbazol und/oder N-Vinylcaprolactam;
  
- Diallyldimethylammoniumchlorid, Vinylidenchlorid, Vinylchlorid, Acrolein, Methacrolein;
  
- 40 - 1,3-Diketogruppen enthaltende Monomere, wie Acetoacetoxylethyl(meth)acrylat oder Diacetonacrylamid, harnstoffgruppenhaltigen Monomeren, wie Ureidoethyl(meth)acrylat, Acrylamidoglykolsäure, Methacrylamidoglykolatmethylether;
  
- 45 - Silylgruppen enthaltende Monomere, wie Trimethoxysilylpropylmethacrylat;



## 15

- Glycidylgruppen enthaltende Monomere, wie Glycidylmethacrylat.

Vorzugsweise umfassen die Comonomere wenigstens eine der vorgenannten monoethylenisch ungesättigten Carbonsäuren, insbesondere eine der Monocarbonsäuren, die vorzugsweise in einer Menge bis 10 Gew.-%, z.B. 0,1 bis 10 Gew.-% einpolymerisiert sind. Bevorzugte Comonomere sind weiterhin die Amide monoethylenisch ungesättigter Monocarbonsäuren, z.B. Acrylamid oder Methacrylamid.

10 Diese machen in der Regel, sofern erwünscht, bis zu 10 Gew.-%, z.B. 0,1 bis 10 Gew.-%, insbesondere 0,1 bis 5 Gew.-% der Gesamtmonomermenge aus.

Unter feinteiligen Polymerisaten versteht man solche, deren Polymerteilchen einen gewichtsmittleren Teilchendurchmesser 100 µm aufweisen. Sofern die Polymerisate als wässrige Dispersion eingesetzt werden wird der gewichtsmittlere Polymerteilchendurchmesser  $d_{50}$  einen Wert von 5 µm und insbesondere 2 µm nicht überschreiten. Insbesondere liegt der gewichtsmittlere Teilchendurchmesser  $d_{50}$  der Polymerisateilchen im Bereich von 100 bis 2000 nm. Unter dem gewichtsmittleren Teilchendurchmesser  $d_{50}$  versteht man den Teilchendurchmesser, der von 50 Gew.-% der Polymerisateilchen unterschritten wird. Der gewichtsmittlere Teilchendurchmesser eines Polymerisats lässt sich in bekannter Weise an einer wässrigen Dispersion der Teilchen durch Quasielastische Lichtstreuung oder durch Messung in einer Ultrazentrifuge bestimmen. Die Pulverteilchen der aus den Dispersionen hergestellten Pulver weisen naturgemäß grössere Teilchendurchmesser auf, da die Pulverteilchen in der Regel aus einer Vielzahl agglomerierter Primärteilchen bestehen. Typische Pulverdurchmesser liegen in der Regel im Bereich von 2 bis 100 µm.

Die Monomerzusammensetzung wird im Allgemeinen so gewählt, dass für das Polymerisat A1 eine Glasübergangstemperatur  $T_g$  im Bereich von -60 °C bis +150 °C resultiert.

Die Herstellung der feinteiligen Polymerisate erfolgt in der Regel durch radikalische Emulsionspolymerisation in Gegenwart der hierfür üblichen grenzflächenaktiven Verbindungen nach bekannten Verfahren (siehe z.B. D. Distler, Wässrige Polymerdispersionen, Wiley VCH, Weinheim 1999; H. Warson, Synthetic Resin Emulsions, Ernest Benn Ltd., London 1972, S. 193-242). Die Herstellung der Polymerpulver aus diesen Dispersionen ist dem Fachmann ebenfalls geläufig und erfolgt in der Regel durch Sprühtrocknung der wässrigen Polymerdispersionen, vorzugsweise in Gegenwart hierfür üblicher Sprühhilfsmittel wie Polyvinylalkohol, Polyacrylsäuren, Phenolsulfonsäure- und Naphthalinsulfonsäure-Formaldehyd-Kon-

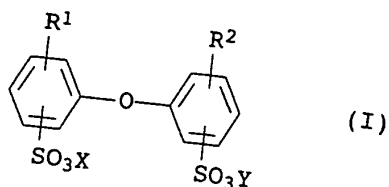
16

densationsprodukten. Sowohl wässrige Polymerdispersionen als auch die daraus hergestellten Pulver sind überdies kommerziell erhältlich, z.B. unter den ACRONAL®- STYRONAL®-, BUTOFAN®-und STYROFAN®-Marken der BASF-Aktiengesellschaft, Ludwigshafen, Deutschland.

Als grenzflächenaktive Substanzen kommen die üblicherweise für die Emulsionspolymerisation eingesetzten Emulgatoren und Schutzkolloide in Betracht. Bevorzugte Emulgatoren sind anionische und nichtionische Emulgatoren, die im Unterschied zu den Schutzkolloiden in der Regel ein Molekulargewicht unterhalb 2000 g/mol aufweisen und in Mengen von bis zu 0,2 bis 10 Gew.-%, vorzugsweise 0,5 bis 5 Gew.-%, bezogen auf das Polymerisat in der Dispersion bzw. auf die zu polymerisierenden Monomere M eingesetzt werden.

Zu den anionischen Emulgatoren zählen Alkali- und Ammoniumsalze von Alkylsulfaten (Alkylrest: C<sub>8</sub>-C<sub>20</sub>), von Schwefelsäurehalbestern ethoxylierter Alkanole (EO-Grad: 2 bis 50, Alkylrest: C<sub>8</sub> bis C<sub>20</sub>) und ethoxylierter Alkylphenole (EO-Grad: 3 bis 50, Alkylrest: C<sub>4</sub>-C<sub>20</sub>), von Alkylsulfonsäuren (Alkylrest: C<sub>8</sub> bis C<sub>20</sub>) und von Alkylarylsulfonsäuren (Alkylrest: C<sub>4</sub>-C<sub>20</sub>). Weitere geeignete anionische Emulgatoren finden sich in Houben-Weyl, Methoden der organischen Chemie, Band XIV/1, Makromolekulare Stoffe, Georg-Thieme-Verlag, Stuttgart, 1961, S. 192-208).

Zu den anionischen grenzflächenaktiven Substanzen zählen auch Verbindungen der allgemeinen Formel I,



worin R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> Wasserstoff oder lineare oder verzweigte Alkylreste mit 6 bis 18 C-Atomen und insbesondere mit 6, 12 und 16 C-Atomen bedeuten, wobei R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> nicht beide gleichzeitig Wasserstoff sind. X und Y sind bevorzugt Natrium, Kalium oder Ammonium, wobei Natrium besonders bevorzugt ist. Häufig werden technische Gemische verwendet, die einen Anteil von 50 bis 90 Gew.-% des monoalkylierten Produktes aufweisen, beispielsweise Dowfax® 2A1 (Warenzeichen der Dow Chemical Company). Die Verbindungen I sind allgemein bekannt, z. B. aus der US-A-4,269,749.

## 17

Geeignete nichtionische Emulgatoren sind araliphatische oder ali-  
phatische nichtionische Emulgatoren, beispielsweise ethoxylierte  
Mono-, Di- und Trialkylphenole (EO-Grad: 3 bis 50, Alkylrest:  
C<sub>4</sub>-C<sub>9</sub>), Ethoxylate langkettiger Alkohole (EO-Grad: 3 bis 50, Al-  
5 kylrest: C<sub>8</sub>-C<sub>36</sub>), sowie Polyethylenoxid/Polypropylenoxid-Blockco-  
polymere. Bevorzugt werden Ethoxylate langkettiger Alkanole (Al-  
kylrest: C<sub>10</sub>-C<sub>22</sub>, mittlerer Ethoxylierungsgrad: 3 bis 50) und da-  
runter besonders bevorzugt solche auf Basis von Oxoalkoholen und  
nativen Alkoholen mit einem linearen oder verzweigten C<sub>12</sub>-C<sub>18</sub>-Al-  
10 kylrest und einem Ethoxilierungsgrad von 8 bis 50.

Bevorzugt werden anionische Emulgatoren, insbesondere Emulgatoren  
der allgemeinen Formel I, oder Kombinationen aus wenigstens einem  
anionischen und einem nichtionischen Emulgator eingesetzt.

15

Geeignete Schutzkolloide sind beispielsweise Polyvinylalkohole,  
Stärke- und Cellulosederivate, Carboxylgruppen enthaltende Poly-  
mere wie Homo- und Copolymere der Acrylsäure und/oder der Metha-  
crylsäure mit Comonomeren wie Styrol, Olefinen oder Hydroxyalky-  
20 lestern, oder Vinylpyrrolidon enthaltende Homo- und Copolymeri-  
sate. Eine ausführliche Beschreibung weiterer geeigneter Schutz-  
kolloide findet sich in Houben-Weyl, Methoden der organischen  
Chemie, Band XIV/1, Makromolekulare Stoffe, Georg-Thieme-Verlag,  
Stuttgart 1961, S. 411-420. Auch Gemische aus Emulgatoren und/  
25 oder Schutzkolloiden können verwendet werden.

Diese grenzflächenaktiven Verbindungen verbleiben herstellungsbe-  
dingt in den üblichen Einsatzformen der feinteiligen Polymerisate  
und sind somit auch in den erfindungsgemäss angewendeten Zusam-  
30 mensetzungen enthalten, wenn diese ein feinteiliges Polymerisat  
enthalten.

Weiterhin können die erfindungsgemässen Zusammensetzungen als  
zusätzlichen Bestandteil eine polmyere Polycarbonsäure, **vorzugs-**  
35 weise ein Homo- oder Copolymer der Acrylsäure und/oder der Metha-  
crylsäure enthalten.

Bei den polymeren Polycarbonsäuren handelt es sich in der Regel  
um Polymere, die aus ethylenisch ungesättigten Mono- oder Dicar-  
40 bonsäuren mit vorzugsweise 3 bis 8 C-Atomen und gegebenenfalls  
davon verschiedenen Comonomeren aufgebaut sind. In diesen Poly-  
carbonsäuren bilden die ethylenisch ungesättigten Carbonsäuren  
den Hauptbestandteil, d.h. sie machen mehr als 40 Gew.-%, vor-  
zugsweise mehr als 50 Gew.-% und insbesondere mehr als 60 Gew.-%  
45 der Monomere aus, aus denen die polymere Polycarbonsäure aufge-  
baut ist.

## 18

Bevorzugte ethylenisch ungesättigte Mono- oder Dicarbonsäuren sind Acrylsäure, Methacrylsäure, Maleinsäure und Fumarsäure und besonders bevorzugt Acrylsäure und Methacrylsäure sowie deren Mischungen untereinander und deren Mischungen mit Maleinsäure.

5

Als Comonomere kommen die zuvor bei den feinteiligen Monomeren als Hauptmonomere aufgeführten Monomere sowie die Amide und die C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Hydroxyalkylester der vorgenannten ethylenisch ungesättigten Mono- und Dicarbonsäuren, ethylenisch ungesättigte Phosphor- oder  
10 Phosphonsäuren, N-Vinylamide und ethylenisch ungesättigte Sulfonsäuren (sulfogruppen tragenden Monomere) in Betracht.

Ganz besonders bevorzugt sind Copolymere der Acrylsäure mit Maleinsäure, wie sie in der EP-A 75820 beschrieben sind, sowie  
15 Homopolymere der Acrylsäure.

Häufig weisen die polymeren Polycarbonsäuren ein zahlenmittleres Molekulargewicht im Bereich von 1000 bis 1 Mio. auf. Der K-Wert dieser Polycarbonsäuren (nach Fikentscher) liegt in der Regel im  
20 Bereich von 10 bis 150 (gemessen als 1 gew.-%ige Lösung in Wasser).

Die polymeren Polycarbonsäuren und ihre Herstellung sind aus dem Stand der Technik bekannt, beispielsweise aus der  
25 DE-A 196 21 573, EP-A 75 820 und DE-A 36 20 149.

Sofern erwünscht, kann man die polymeren Polycarbonsäuren in den erfindungsgemäßen Zusammensetzungen in einer Menge von 5 bis 500 Gew.-%, bezogen auf das Umsetzungsprodukt aus Polycarbonsäure  
30 I mit Ammoniak, einsetzen.

Bevorzugt werden die polymeren Polycarbonsäuren zusammen einer wenigstens zwei Hydroxylgruppen aufweisenden Verbindung, z.B. mit den Hydroxylgruppen tragenden Aminoverbindungen der Formel IV  
35 und/oder mit den Aminen der Formel VI, eingesetzt. Das Gewichtsverhältnis von polymerer Polycarbonsäure zu Hydroxylgruppen aufweisender Verbindung liegt dann vorzugsweise im Bereich von 100:1 bis 1:1 und insbesondere im Bereich von 50:1 bis 2:1.

40 Ferner können die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen die in der Beschichtungs- und Imprägnierungstechnologie übliche Hilfsstoffe, farbgebende Bestandteile und Füllstoffe enthalten. Beispiele für feinteilige inerte Füllstoffe sind Aluminiumsilikate, Quarz, gefällte oder pyrogene Kieselsäure, Leicht- und Schwerspat, Talkum,  
45 Dolomit oder Calciumcarbonat; farbgebende Bestandteile sind insbesondere Pigmente wie Titanweiß, Zinkweiß, Eisenoxidschwarz etc. Beispiele für Hilfststoffe sind, oberflächenaktive Substanzen zur

## 19

Verbesserung der Benetzungbarkeit, Haftvermittler sowie Konservierungsmittel.

Die erfindungsgemäße Verwendung der oben definierten Zusammensetzungen ermöglichen die Herstellung von Formkörpern und verfestigten Flächengebilden mit ausgezeichneten mechanischen Eigenschaften bei vergleichsweise kurzen Härtingszeiten. Die erfindungsgemäße Verwendung der oben definierten Zusammensetzungen erlaubt insbesondere die Herstellung von Formkörpern mit einer hohen mechanischen Festigkeit, die auch unter Feuchtklima-Bedingungen Dimensionsstabilität aufweisen. Weiterhin eignen sich die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen als Leim- bzw. Tränkhharze für Papiere, insbesondere Dekorpapiere, sowie als Klebstoff zur Herstellung von Furnieren und Laminaten.

15

Die unter Verwendung der erfindungsgemäss verwendeten Zusammensetzungen hergestellten Formkörper und Flächengebilde sind formaldehydfrei. Formaldehydfrei bedeutet, dass die erfindungsgemäßen Formkörper und Flächengebilde aufgrund des verwendeten Bindemittels keine wesentlichen Mengen an gebundenem oder freiem Formaldehyd enthalten, außer den im zu bindenden Substrat möglicherweise enthaltenen natürlichen Formaldehydquellen. Bei der Herstellung der erfindungsgemäßen Formkörper und Flächengebilde werden daher keine wesentlichen Mengen an Formaldehyd freigesetzt, die über die durch das Substrat bedingten Mengen hinausgehen. Im Allgemeinen enthalten die Formkörper und Flächengebilde weniger als 100 ppm Formaldehyd und geben auch kein aus dem Bindemittel resultierendes Formaldehyd an die Umgebung ab.

Überdies können die durch die erfindungsgemäße Verwendung der oben definierten Zusammensetzungen hergestellten Formkörper und Flächengebilde in einfacher Weise entsorgt oder recycelt werden. Hierzu behandelt man den Formkörper mit wässrigem Alkali, beispielsweise mit wässrigen Lösungen von Alkalihydroxiden, insbesondere Natrium- oder Kaliumhydroxid, oder Alkalicarbonaten. Die Alkalilösungen enthalten beispielsweise 5 bis 50 Gew.-%, insbesondere 10 bis 30 Gew.-% Alkali. In der Regel reicht ein Besprühen oder Tränken des Formkörpers mit dem wässrigen Alkali, vorzugsweise bei erhöhter Temperatur aus, z.B. bei Temperaturen im Bereich von 30 bis 100°C. Die so erhaltenen Laugen können einer biologischen Klärung zugeführt werden, denn die in ihnen enthaltenen organischen Bestandteile sind zu wenigstens 60 % biologisch abbaubar.

Zur Herstellung von Formkörpern durch erfindungsgemäße Verwendung der oben definierten Zusammensetzung wird ein feinteiliges Material, im Folgenden Substrat, mit einer oben definierten Zu-

## 20

sammensetzung imprägniert oder vermischt und die so erhaltene Mischung bei Temperaturen oberhalb 120°C einem Formgebungsverfahren unterworfen.

- 5 Unter feinteiligen Substraten versteht man insbesondere faserige oder körnige Substratmaterialien, wobei die körnigen Materialien typischerweise durchschnittliche Abmessungen im Bereich von 0,01 bis 2 cm aufweisen und die faserartigen Materialien typischerweise durchschnittliche Faserlängen von 0,1 bis 10 cm aufweisen.
- 10 Beispiele für körnige Substratmaterialien sind natürliche organische Materialien wie Holzschnitzel und -späne sowie Korkschnitzel und anorganische Materialien wie Sand. Beispiele für faserartige Materialien sind Naturfasern wie Holzfasern, Jutefasern, Flachsfasern, Hanffasern, Kokosfasern, Baumwollfasern, Cellulosefasern, Wolle, Brennessel- oder Sisalfasern, sowie künstliche Faser-
- 15 sermaterialien wie Kunstfasern auf der Basis von faserbildenden organischen Polymeren, Glasfasern und Mineralfasern.

- Die Durchführung des Formgebungsverfahrens bei Temperaturen ober-
- 20 halb 120°C führt zu einer Verfestigung der Mischung aus der erfindungsgemässen Zusammensetzung und dem feinteiligen Material zu einem Formkörper. Man nimmt an, dass die Verfestigung durch die Umwandlung der eingesetzten Zusammensetzung in die oben beschriebenen wasserunlösliche Polymere mit cyclischen Imidstrukturen,
- 25 z.B. Struktureinheiten der allgemeinen Formel III, bewirkt wird, wobei eine zusätzliche Verfestigung durch die gegebenenfalls eingesetzten Verbindungen mit wenigstens zwei OH-Gruppen bewirkt wird. Diese ist vermutlich auf Vernetzungsreaktionen zwischen den gebildeten Polymeren zurückzuführen. Die gegebenenfalls einge-
- 30 setzten feinteiligen Polymerisate bewirken vermutlich eine Flexibilisierung und zusätzliche Hydrophobierung der nach dem erfindungsgemässen Verfahren erhältlichen Formkörper.

- Die erfindungsgemäss zur Anwendung kommenden Zusammensetzungen
- 35 liegen vor der Anwendung als monomolekulare Verbindungen oder als niedermolekulare Oligomere vor. Sie bilden daher beim Erwärmen dünnflüssige Schmelzen bzw. niedrig viskose Lösungen, die zu einer besonders gute Verteilung des Bindemittels in den zu verfestigenden feinteiligen Substraten führt.

- 40 Die zur Herstellung des Formkörpers erforderlichen Temperaturen betragen vorzugsweise wenigstens 130°C, insbesondere wenigstens 140°C, besonders bevorzugt oberhalb 150°C, und ganz besonders bevorzugt oberhalb 160°C, und werden in der Regel 350°C nicht überschreiten. Vorzugsweise liegen sie im Bereich von 130°C bis 300°C,
- 45 insbesondere 140°C bis 280°C, besonders bevorzugt 140°C bis 250°C und ganz besonders bevorzugt 160°C bis 230°C. Die jeweilige rich-

## 21

tet sich auch nach dem gewählten Substrat, wobei das Ausmass der Härtung auch über die Härtungsdauer gesteuert werden kann, die je nach Temperatur im Bereich weniger Minuten, z.B. 1 min, bis mehrere Stunden, z.B. bis 3 h betragen kann.

5

Die Verfestigung des feinteiligen Substrats kann sowohl in einer als auch in zwei oder mehr Stufen erfolgen. So kann z. B. in einem ersten Schritt die Härtungstemperatur und -zeit so gewählt werden, dass zunächst nur eine gleichmässige Verteilung der

10 schmelzflüssigen Bestandteile der Zusammensetzung in dem feinteiligen Substrat erreicht wird, und anschliessend durch Temperaturerhöhung eine weitgehend vollständige Verfestigung in einem zweiten oder weiteren Schritt erfolgt. Dieser weitere Schritt kann räumlich und zeitlich getrennt vom ersten Schritt erfolgen.

15 Dadurch wird beispielsweise die Verwendung der erfindungsgemässen Zusammensetzungen zur Herstellung von mit Bindemittel imprägnierten Halbzeugen möglich, die an anderer Stelle geformt und verfestigt werden können.

20 Das Formgebungsverfahren richtet sich naturgemäss nach der Art und der Geometrie des herzustellenden Formkörpers. Die Formgebung erfolgt in der Regel durch Anwendung von erhöhtem Druck, z.B. von im Allgemeinen 2 bis 1 000 bar, vorzugsweise 10 bis 750 bar, besonders bevorzugt 200 bis 500 bar.

25

Zur Herstellung der Formkörper wird man die oben definierten Zusammensetzung im Allgemeinen in einer Menge von 1 bis 100 Gew.-%, insbesondere 2 bis 50 Gew.-%, besonders bevorzugt 5 bis 40 Gew.-%, bezogen auf das feinteilige Substrat verwenden.

30

Das Vermischen bzw. Imprägnieren des feinteiligen Substrats mit den erfindungsgemäss zur Anwendung kommenden Zusammensetzungen kann in üblicher Weise durchgeführt werden. Pulverförmige Zusammensetzungen können beispielsweise auf das, gegebenenfalls mecha-

35 nisch vorverfestigte, Substratmaterial aufgestreut, eingestreut, eingerüttelt oder direkt mit dem Fasermaterial vermischt werden. Z.B. kann man das Substratmaterial flächenhaft ausbreiten und gegebenenfalls verdichtet. Vor dem Aufstreuen der pulverförmigen Zusammensetzung kann das Substrat auch mit Wasser angefeuchtet  
40 werden. Das feinteilige Substrat kann auch mit einer fließsfähigen Form der oben definierten Zusammensetzung, z.B. einer wässrigen Lösung, beschichtet werden oder mit dem pulverförmigen Bindemittel vermischt werden.

45

## 22

Die Mischung aus Fasern, Schnitzeln und/oder Spänen und der oben definierten Zusammensetzung kann z. B. bei Temperaturen von 30 bis 120 °C vorgetrocknet werden und anschließend zu den Formkörpern bei den obengenannten Temperaturen verpresst werden.

5

Das erfindungsgemäße Verfahren eignet sich vorzugsweise zur Herstellung von Platten und konturierten Formteilen. Ihre Dicke beträgt im Allgemeinen mindestens 1 mm, vorzugsweise mindestens 2 mm. In Betracht kommen insbesondere Holzfaser- und Spanplatten, 10 Korkplatten, -blöcke und -formen, Dämmstoffplatten und -rollen, z. B. aus Natur-, Mineral- und Glasfasern, für Automobilinnenteile, z. B. Türinnenverkleidungen, Armatureenträger, Hutablagen und vergleichbare.

- 15 Das erfindungsgemäße Verfahren eignet sich insbesondere zur Herstellung von Holzwerkstoffen wie Holzspanplatten und Holzfaserplatten. Die Herstellung von derartigen Formkörpern durch Verleimung von zerteiltem Holz ist vom Prinzip her bekannt (vgl. Ullmanns Encyclopädie der technischen Chemie, 4. Auflage 1976, Band 20 12, S. 709-727 sowie H.J. Deppe, K. Ernst Taschenbuch der Spanplattentechnik, 2. Auflage, Verlag Leinfelden 1982).

- Es werden bevorzugt Späne eingesetzt, deren mittlere Spangröße zwischen 0,1 und 4 mm, insbesondere 0,2 und 2 mm liegt, und die 25 weniger als 6 Gew.-% Wasser enthalten. Es können jedoch auch deutlich grobteiligere Späne und solche mit höherem Feuchtigkeitsgehalt eingesetzt werden. Das Bindemittel wird möglichst gleichmäßig auf die Holzspäne aufgetragen, wobei das Gewichtsverhältnis Bindemittel:Holzspäne vorzugsweise 0,02:1 bis 0,4:1 be- 30 trägt. Die beleimten Holzspäne werden anschließend zu einer Schicht mit möglichst gleichmäßiger Oberfläche ausgestreut, wobei sich die Dicke der Schicht nach der gewünschten Dicke der fertigen Spanplatte richtet. Die Streuschicht wird bei einer Temperatur von z.B. 180 bis 230 °C durch Anwendung von Drücken von übli- 35 cherweise 10 bis 750 bar zu einer Platte verpresst. Die benötigten Presszeiten können in einem weiten Bereich variieren und liegen im Allgemeinen zwischen 15 Sekunden bis 30 Minuten.

- Die zur Herstellung von mitteldichten Holzfaserplatten (MDF) be- 40 nötigten Holzfasern geeigneter Qualität können aus rindenfreien Holzschnitzeln durch Zermahlung in Spezialmühlen oder sogenannten Refinern bei Temperaturen von ca. 180 °C hergestellt werden.

- Zur Beleimung werden die Holzfasern im Allgemeinen mit einem 45 Luftstrom aufgewirbelt und die thermisch härtbare Zusammensetzung in den so erzeugten Fasernstrom eingedüst ("Blow-Line" Verfahren). Das Verhältnis Holzfasern zu Bindemittel, bezogen auf den



## 23

Trockengehalt bzw. Feststoffgehalt der Zusammensetzung beträgt üblicherweise 40:1 bis 2:1, bevorzugt 20:1 bis 4:1. Die beleimten Fasern werden in dem Fasernstrom bei erhöhten Temperaturen getrocknet, zu einem Faservlies ausgestreut und bei Drücken von 10 bis 750 bar zu Platten oder Formkörpern verpresst.

Die beleimten Holzfasern können auch wie in der DE-OS 2417243 beschrieben, zu einer transportablen Fasermatte verarbeitet werden. Dieses Halbzeug kann dann in einem zweiten, zeitlich und räumlich getrennten Schritt zu Platten oder Formteilen, wie z. B. Türinnenverkleidungen von Kraftfahrzeugen weiterverarbeitet werden.

In ähnlicher Weise können auch Formteile aus Kork hergestellt werden. Als feinteiliges Korksubstrat kommen sowohl gemahlener Kork mit Teilchengrößen < 2 mm als auch grobteiliger Kork mit Teilchengrößen im Bereich von 1 bis 20 mm, vorzugsweise 1 bis 10 mm, in Betracht. Hinsichtlich den Mengen an Bindemitteln und den Verarbeitungstemperaturen gilt das oben Gesagte.

Selbstverständlich können auch andere Naturfaserstoffe, wie Sisal, Jute, Hanf, Flachs, Kokosfasern und/oder Bananenfasern mit den erfindungsgemässen Bindemitteln zu Platten und Formteile verarbeitet werden. Die Naturfaserstoffe können auch in Mischungen mit Kunststofffasern, z. B. Polypropylen, Polyethylen, Polyester, Polyamide oder Polyacrylnitril verwendet werden. Diese Kunststofffasern können dabei auch als Cobindemittel neben dem erfindungsgemässen Bindemittel fungieren. Der Anteil der Kunststofffasern beträgt dabei bevorzugt weniger als 50 Gew.-%, insbesondere weniger als 30 Gew.-% und ganz besonders bevorzugt weniger als 10 Gew.-%, bezogen auf alle Späne, Schnitzel oder Fasern.

Die oben definierten Zusammensetzungen sind weiterhin geeignet als formaldehydfreie Bindemittel für mineralische Substrate wie Sand. Formkörper aus mineralischen Substraten, insbesondere Sand, finden beispielsweise als Gussformen und Gusskerne für den Metallguss sowie als Kokillendämmplatten Verwendung (E. Flemming, W. Tilch, Formstoffe und Formverfahren, Dt. Verlag für Grundstoffindustrie, Stuttgart, 1993).

Die Herstellung der Formkörper aus mineralischen Substraten erfolgt in der oben beschriebenen Weise durch Vermischen des Substrats mit den oben definierten Zusammensetzungen in den hierfür üblichen Apparaturen und anschliessendes Aushärten bei den oben angegebenen Temperaturen, vorzugsweise im Bereich von 160 bis 230°C. Die Zusammensetzung (gerechnet als Umsetzungsprodukt aus Polycarbonsäure I mit Ammoniak) wird vorzugsweise in einer Menge von 2 bis 50 Gew.-%, bezogen auf das mineralische Substrat einge-

setzt. Bevorzugt werden zu diesem Zweck Zusammensetzungen, die wenigstens eine der oben genannten Verbindungen mit wenigstens zwei Hydroxylgruppen enthalten, vorzugsweise in einer Menge von 20 bis 50 Gew.-Teilen (GT), bezogen auf 100 gew.-Teile Umsetzungsprodukt.

Die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen können auch zum Verfestigen von Flächengebilden aus Fasermaterialien verwendet werden. Die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen wirken dabei im ausgehärteten Zustand, d.h. nach dem Erwärmen auf die obengeannten Temperaturen als Bindemittel für die Fasern. Bevorzugt sind Glasfaservliese. Die ungebundenen Faservliese (Rohfaservliese), insbesondere aus Glasfasern, werden durch die ausgehärteten erfindungsgemäßen Zusammensetzungen gebunden, d. h. verfestigt.

Beispiele für Flächengebilde aus Fasermaterialien sind neben Geweben insbesondere Faservliese und Fasermatten. Als Faservliese seien Vliese aus den vorgenannten Fasermaterialien, insbesondere Vliese aus Cellulose, Celluloseacetat, Estern und Ethern der Cellulose, Baumwolle, Hanf, tierische Fasern, wie Wolle oder Haare und insbesondere Vliese von synthetischen oder anorganischen Fasern, z. B. Aramid-, Kohlenstoff-, Polyacrylnitril-, Polyester-, Mineral-, PVC- oder Glasfasern genannt.

Im Falle der Verwendung als Bindemittel für Faservliese können die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen z. B. folgende Zusatzstoffe enthalten: Silikate, Silikone, borhaltige Verbindungen, Gleitmittel, Benetzungsmittel.

Zur Verfestigung der Fasergebilde wird die erfindungsgemäss verwendete Zusammensetzung vorzugsweise im Gewichtsverhältnis Faser/Bindemittel von 10:1 bis 1:1, besonders bevorzugt von 6:1 bis 3:1 auf das Rohfaservlies in der hierfür üblichen Weise, z. B. tränken, pflatschen, streichen bedrucken, oder im Falle der Pulver durch Einblasen mit dem Fasermaterial aufgebracht.

Nach dem Einarbeiten der Zusammensetzung in das Rohfaservlies erfolgt im Allgemeinen eine Verfestigung der Bindemittelzusammensetzung vorzugsweise bei 120 bis 350 °C, insbesondere 130 bis 280 °C, ganz besonders bevorzugt 140 bis 230 °C über einen Zeitraum von vorzugsweise 10 Sekunden bis 10 Minuten, insbesondere von 10 Sekunden bis 3 Minuten.

Das erhaltene, gebundene Faservlies weist eine hohe Festigkeit im trockenen und nassen Zustand auf. Die erfindungsgemäßen Bindemittel erlauben insbesondere kurze Trocknungszeiten und auch niedrige Trocknungstemperaturen. Die gebundenen Faservliese, ins-

## 25

besondere Glasfaservliese eignen sich zur Verwendung als bzw. in Dachbahnen, als Trägermaterialien für Tapeten oder als Inliner bzw. Trägermaterial für Fußbodenbeläge z. B. aus PVC.

- 5 Beispiele für Flächengebilde aus Fasermaterialien sind ausserdem die üblicherweise als Dämmstoffe verwendeten Fasermatten, die je nach Verwendung aus anorganischen Fasern, wie Mineralfasern und Glasfasern (Wärmedämmmatten) oder den obengenannten Naturfasern aufgebaut sind.
- 10 Dämmstoffe aus anorganischen Fasern werden technisch durch Ver-spinnen von Schmelzen der entsprechenden mineralischen Rohstoffe hergestellt, siehe US-A-2,550,465, US-A-2,604,427, US-A-2,830,648, EP-A-354 913 und EP-A-567 480. Die Zusammen-
- 15 setzung wird dann in die frisch hergestellten, noch heißen an-organischen Fasern eingearbeitet. Die Zusammensetzung bleibt da-bei im Wesentlichen unausgehärtet als viskose Masse auf den Fa-sern haften. Eine auf diese Weise hergestellte endlose, bindemit-telhaltige Fasermatte wird von geeigneten Förderbändern durch ei-
- 20 nen Härtingsofen weitertransportiert. Dort härtet die Matte bei Temperaturen im Bereich von ca. 100 bis 200 °C zu einer steifen Matrix aus. Nach dem Härten werden die Dämmstoffmatten in ge-eigneter Weise konfektioniert.
- 25 Der überwiegende Anteil der in den Dämmstoffen verwendeten anor-ganischen Fasern hat einen Durchmesser im Bereich von 0,5 bis 20 µm und eine Länge im Bereich von 0,5 bis 10 cm.
- Außerdem kann man die erfindungsgemäßen Zusammensetzung zur Her-
- 30 stellung von Beschichtungs- und Imprägniermassen für Platten aus organischen und/oder anorganischen Fasern, nicht fasrigen minera-lischen Füllstoffen sowie Stärke und/oder wässrigen Polymerisat-dispersionen verwenden. Beschichtungs- und Imprägniermassen auf Basis der oben definierten Zusammensetzungen verleihen den Plat-
- 35 ten einen hohen Biegemodul. Die Herstellung derartiger Platten ist vom Prinzip her bekannt.
- Derartige Platten werden üblicherweise als Schalldämmplatten ein-gesetzt. Die Dicke der Platten liegt üblicherweise im Bereich von
- 40 etwa 5 bis 30 mm, bevorzugt im Bereich von 10 bis 25 mm. Die Kantenlänge der quadratischen oder rechteckigen Platten liegt üblicherweise im Bereich von 200 bis 2000 mm.
- Die Komponenten des erfindungsgemäßen Zusammensetzung sind in der
- 45 Beschichtungsmasse im Allgemeinen in einer Menge von 1 bis 65 Gew.-% enthalten. Der Anteil der inerten Füllstoffe liegt im

## 26

Allgemeinen bei 0 bis 85 Gew.-%. Der Wasseranteil der Beschichtungsmasse beträgt in der Regel wenigstens 10 Gew.-%.

Die Anwendung der Beschichtungsmassen erfolgt in üblicher Weise  
5 durch Auftragen auf ein Substrat, beispielsweise durch Sprühen, Rollen, Gießen oder Imprägnieren. Die aufgetragenen Mengen, bezogen auf den Trockengehalt der Zusammensetzung, betragen im Allgemeinen 2 bis 100 g/m<sup>2</sup>. Fertigstellung der Beschichtung erfolgt gegebenenfalls nach Vortrocknung durch Härtung bei den oben angegebenen  
10 Temperaturen.

Die einzusetzenden Mengen an Zusatzstoffen sind dem Fachmann bekannt und richten sich im Einzelfall nach den gewünschten Eigenschaften und dem Anwendungszweck.

15

Die nachfolgenden, nicht einschränkenden Beispiele erläutern die Erfindung.

I Prüfung als Bindemittel für Holzfasern (Beispiele 1 bis 7)

20

x g Holzfasern (thermomechanisch aufgeschlossenes Fichtenholz, mittlere Faserlänge ca. 3 mm, Restfeuchte 7 %) wurden in einem Kunststoffbehälter aufgeschlagen. Hierzu gab man y g Bindemittel (gerechnet als Feststoff) in Form einer etwa 40 gew.-%igen wässrigen Bindemittellösung mittels einer Spritzpistole. Die so be-  
25 leimten Fasern wurden bei 60 °C auf eine Restfeuchte von etwa 7 % getrocknet. 180 g dieser Mischung wurden in eine Holzform (30 x 30 cm) eingefüllt, mit einer Holzplatte verdichtet, entschalt und mit einer hydraulischen Presse bei einer Presstemperatur von  
30 220 °C für 120 sec zwischen 2 Metallplatten mit 2 mm Abstandshaltern verpresst. Hierzu wurde zunächst 20 sec ein Pressendruck von 50 bar eingestellt. Dann wurde nach einer 10 sec anhaltenden Druckentlastung noch 90 sec lang ein Druck von 200 bar gehalten.

35 In analoger Weise stellte man Holzfasерplatten unter Verwendung von pulverförmigen Zusammensetzungen her. Hierzu wurden x g der oben beschriebenen Holzfasern mit y g Pulver in einem Kunststoff-sack intensiv vermischt und in der oben beschriebenen Weise zu Platten verpresst.

40

Es wurden die folgenden Zusammensetzungen getestet:

- ZV1 selbstvernetzendes Polyvinylacetat-Pulver, Vinnex LL 572  
der Wacker Chemie, Burghausen (Vergleich)
- 45 ZV2 Maleinsäureanhydrid (Vergleich)
- Z1 Maleinsäureamid als Pulver

## 27

- 22 Maleinsäureanhydrid und Ammoniumcarbonat im Gew.-Verhältnis 1:1 als Pulver
- 23 Maleinsäureammoniumsalz als 40 gew.-%ige Lösung
- 24 Maleinsäureammoniumsalz + Triethanolamin im Gew.-Verhältnis 1:1 als wässrige Lösung
- 5

Die erhaltenen Faserplatten wurden zur Bestimmung der mechanischen Eigenschaften 24 h bzw. 7 Tage im Klimaschrank bei 80°C und 90 % relativer Luftfeuchte gelagert. Anschliessend wurden die

10 Proben hinsichtlich ihrer Festigkeit nach einer Notenskala von 1 bis 6 beurteilt, wobei 1 die beste und 6 die schlechteste Beurteilung ist. Ausserdem wurde die Dickenquellung (in % bezogen auf die ursprüngliche Dicke) und das Durchbiegen der Platten bestimmt. Zur Bestimmung des Durchbiegens der Platten wurden 5 cm x

15 30 cm große Probekörper auf einer waagrechten Unterlage mit einer Stützweite von 23 cm fixiert. Gemessen wurde die Durchbiegung bezogen auf die Waagrechte nach 24 h bzw. 7 Tage im Klimaschrank bei 80°C und 90 % relativer Luftfeuchte.

- 20 Ausserdem wurden Dickenquellung und Wasseraufnahme bei 2h bzw. 24 h Lagerung in entmineralisiertem Wasser analog zur DIN 52351 bestimmt. Die Wasseraufnahme entspricht der Gewichtszunahme in %, bezogen auf das ursprüngliche Gewicht. Die Dickenquellung ist als relative Zunahme der Dicke von 2 x 2 cm großen Probekörper angegeben.
- 25 Ausserdem wurde im Biegeversuch nach DIN EN 310 bei 23°C und 120°C die Biegefestigkeit und das E-Modul der Platten bestimmt. Die Daten sind in Tabelle 1 zusammengestellt.

30

35

40

45

Tabelle 1:

Beispiel	V1	V2	1	2	3	4	5	6	7
Zusammensetzung	ZV1	ZV2*	Z1	Z1	Z1	Z2	Z3	Z3	Z4
Holzfasern [g]	170	160	180	170	160	180	180	160	180
Bindemittelzusammensetzung [g]¹)	30	40	20	30	40	20	20	40	25
Prüfung im Klimaschrank									
Festigkeit 24 h	-	3	3	-	2	3	-	2	3
Festigkeit 7 d	-	5	3	-	3	4	-	3	3
Durchbiegen 24 h [mm]	-	50	16	-	20	29	-	9	20
Durchbiegen 7 d [mm]	-	> 60	32	-	55	40	-	31	35
Dickenquellung 7 d [%]	-	28	25	-	26	27	-	19	21
Wasserlagerung									
Wasseraufnahme 2 h [%]	154	45	46	59	40	66	40	38	49
Wasseraufnahme 24 h [%]	176	54	54	67	46	75	47	48	64
Dickenquellung 2 h [%]	113	19	30	28	21	61	18	16	28
Dickenquellung 24 h [%]	126	22	33	31	23	66	21	18	33
Biegeversuch:									
Biegefestigkeit 23°C [N/mm²]	30,5	19	-**	42,8	43,2	29,6	39,4	40,8	37,8
Biegefestigkeit 120°C [N/mm²]	11	17,2	31,9	31	23,2	29,9	33,9	28,5	26,5
E-Modul 23°C [N/mm²]	3050	3934	-**	4645	5416	3539	4340	5296	4023
E-Modul 120°C [N/mm²]	1112	3096	3387	3424	3225	3297	4430	3896	3323

1) gerechnet als Feststoff;

\* beim Öffnen der Presse wurde ein reizender Rauch freigesetzt

\*\* Werte wurden nicht bestimmt.

5

Die in Beispiel 1 hergestellte Faserplatte wurde 1,5h bei 50°C mit 10 gew.-%iger wässriger Natronlauge behandelt. Der Probenkörper zerfiel nahezu vollständig und die Holzfasern wurden durch Filtration zurückgewonnen. Die erhaltene wässrige Lösung des Bindemittels (Lauge) kann einer Kläranlage zugeführt werden, denn die organischen Inhaltsstoffe dieser Lösung sind zumindest zu 60% biologisch abbaubar. Auf diese Weise ist ein unkompliziertes Recycling bzw. Entsorgung der Holzfaserplatten möglich.

15 II. Prüfung als Bindemittel für Naturfasermatten  
(Beispiele 8 bis 11)

Die im folgenden angegebenen Zusammensetzungen wurden mit Wasser auf einen Feststoffgehalt von etwa 35 Gew.-% verdünnt. Etwa 1 cm dicke Jute/Sisal-Matten mit einem Flächengewicht von 1200 g/m<sup>2</sup> (Hersteller Braunschweiger Jute- und Flachs-Industriebetriebe GmbH) wurden mittels einer Foulard-Walze mit der 35 %-igen Bindemittelflotte imprägniert, so daß, bezogen auf 70 gew.-Teile trockenes Fasergewicht, etwa 30 GT nichtflüchtige Bindemittelanteile aufgebracht wurden (siehe Tabelle 1). Die imprägnierten Fasermatten (35x30 cm) wurden in einem Umlufttrockenschrank bei 65°C auf einen Restfeuchtegehalt von etwa 5 %, bezogen auf das Gesamtgewicht der Matte, getrocknet und mit einer hydraulischen Presse bei einer Presstemperatur von 200 °C gemäß dem folgenden Presszyklus verpresst: 1. Pressdruck 0,75 N/mm<sup>2</sup>, 30 sec; 2. Entspannung, 3 sec; 3. Pressdruck 1,5 N/mm<sup>2</sup>, 27 sec.

- 35
- Z3 Maleinsäureammoniumsalz als 40 gew.-%ige wässrige Lösung
- Z5 Maleinsäureammoniumsalz + Triethanolamin im Gew.-Verhältnis 5:1 als wässrige Lösung
- Z6 Maleinsäureammoniumsalz + Polymerisat P1<sup>1)</sup> im Gewichtsverhältnis 3:1 als wässrige Lösung
- Z7 Maleinsäureammoniumsalz + Styrofan (BASF) + Triethanolamin im Gew.-Verhältnis 5:1,33:1 als wässrige Lösung

40

- 1) Polymerisat P1<sup>1)</sup> ist feinteiliges Polymerisat auf Basis Styrol/Butandien in Form einer handelsüblichen wässrigen Polymerdispersion mit einem Feststoffgehalt von etwa 53 Gew.-% und einer Glasübergangstemperatur von etwa 105°C.

45

## 30

Die Wasseraufnahme WA und die Dickenquellung DQ von in Wasser gelagerten Proben sowie die Biegefestigkeit BF und das E-Modul wurden bestimmt wie unter I. beschrieben. Die Ergebnisse sind in Tabelle 2 zusammengefasst.

5

Tabelle 2

	Beispiel	8	9	10	11
	Bindemittel	23	25	26	27
10	Gewichtsverhältnis Faser/Bindemittel	7:3	7:3,6	7:3	7:3,45
	Plattendicke [mm]	1,71	1,87	1,71	1,87
	Dichte [g/cm <sup>3</sup> ]	0,72	0,75	0,80	0,76
	WA 2h [%]	52	65	36	58
15	WA 24h [%]	54	69	41	62
	DQ 2h [%]	52	77	31	57
	DQ 24h [%]	57	80	35	60
	BF 23 °C [N/mm <sup>2</sup> ]	34,2	25,1	27,9	34,4
20	BF 60 °C [N/mm <sup>2</sup> ]	21,8	18,8	31,8	21,7
	BF 120 °C [N/mm <sup>2</sup> ]	19,6	14,8	15,1	7,6
	E-Modul 23 °C [N/mm <sup>2</sup> ]	6467	5253	3593	5396
	E-Modul 60 °C [N/mm <sup>2</sup> ]	4543	3718	4975	3690
25	E-Modul 120 °C [N/mm <sup>2</sup> ]	4543	3700	3707	1342

### III. Prüfung als Bindemittel für Korkgranulat (Beispiele 12 bis 19)

- 30 In einem Kenwood Labormischer wurden getrocknetes Korkgranulat (gereinigter und gemahlener Kork, Schüttdichte 60g/l, mittlere Partikelgröße 5 mm) und die nachfolgend angegebenen Bindemittelzusammensetzungen in dem in Tabelle 3 angegebenen Gewichtsverhältnissen (jeweils gerechnet als Feststoff) intensiv gemischt
- 35 (etwa 2 min. Nachrühren nach Bindemittelzugabe). Die mit Bindemittel beaufschlagten Korkpartikel wurden getrocknet (Trockenschrank, 50°C). 140 g der getrockneten Korkpartikel wurden in eine zweiteilige Metallform mit 12,5 x 12,5 x 3 cm Innenabmessungen gefüllt und vorverdichtet. Boden und Stempel der Form waren zum
- 40 Abführen des freigesetzten Wasserdampfs mit Entlüftungslöcher perforiert. Die Metallform wurde in einer auf 130 °C vorgeheizten Presse für 2h bei einem Pressendruck von 50 bar (0,75 N/mm<sup>2</sup>) gehalten.

45



## 31

Man erhielt einen Korkblock mit einer Dicke von etwa 3 cm. Die Dickenquellung und Wasseraufnahmen wurde an Probekörpern mit den Abmessungen 5 x 5 x 3,3 cm die in Wasser gelagert wurden, durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 3 angegeben.

5

ZV1 selbstvernetzendes Polyvinylacetat-Pulver, Vinnex LL 572 der Wacker Chemie, Burghausen (Vergleich)

Z1 Maleinsäureamid als Pulver

10 Z2 Maleinsäureanhydrid und Ammoniumcarbonat im Gew.-Verhältnis 1:1 als Pulver

Z3 Maleinsäureammoniumsalz als 40 gew.-%ige Lösung

Tabelle 3:

15	Beispiel	V3	V4	12	13	14
	Bindemittel	ZV1	ZV1	Z1	Z1	Z1
	Gewichtsverhältnis Kork/ Bindemittel	92,5:7,5	90:10	92,5:7,5	90:10	80:20
	Dichte [g/cm <sup>3</sup> ]	n.b.	n.b.	0,27	0,27	0,28
20	Wasseraufnahme 2h [%]	n.b.	n.b.	46,9	47,3	36,4
	Wasseraufnahme 24 h [%]	n.b.	n.b.	101,5	77,6	85,3
	Dickenquellung 2h [%]	n.b.	n.b.	4,4	5,2	5,1
	Dickenquellung 2h [%]	n.b.	n.b.	16,5	17,7	12,7

25

Tabelle 3 (Fortsetzung):

	Beispiel	15	16	17	18	19
	Bindemittel	Z2	Z2	Z3	Z3	Z3
30	Gewichtsverhältnis Kork/ Bindemittel	92,5:7,5	90:10	92,5:7,5	90:10	80:20
	Dichte [g/cm <sup>3</sup> ]	0,29	0,29	0,27	0,27	0,26
	Wasseraufnahme 2h [%]	48,0	53,8	39,6	42,1	38,1
	Wasseraufnahme 24 h [%]	95,6	114,8	87,0	80,9	84,0
35	Dickenquellung 2h [%]	11,3	5,9	2,3	3,2	2,0
	Dickenquellung 2h [%]	24,2	16,5	4,3	6,6	3,3

IV. Prüfung als Bindemittel für feinteilige mineralische Materialien (Beispiele M1 bis M27)

40

600 g Quarzsand F34 wurden mit den in den Tabellen 4 bis 7 angegebenen Einsatzstoffen vermischt. Das Einmischen wässriger Lösungen erfolgte in einem Kenwood-Labormischer. Das Einmischen von Pulvern erfolgt durch Einfüllen der Bestandteile in einen Plastikbeutel und sorgfältiges Schütteln. Aus den feuchten Mischungen wurden in einer Metallform Prüfkörper (Fischer-Riegel) mit

45

## 32

den Abmessungen 17 x 2,3 x 2,3 cm geformt, verdichtet und nach dem Entformen 2 h bei der in den Tabellen angegebenen Temperatur im Umluftofen ausgehärtet. Zum Verdichten wird eine Ramme vom Typ PRA der Georg Fischer AG eingesetzt.

5

Die Biegefestigkeit der so hergestellten Fischerriegel wurde sofort nach Entnahme aus dem Ofen, im trockenen Zustand bei 23°C sowie im nassen Zustand nach einer Stunde Lagerung in entmineralisiertem Wasser bei 23°C mit einem Festigkeitsprüfapparat Typ PFG

10 mit der Prüfvorrichtung PBV (Fa. Georg Fischer, Schaffhausen/CH) bestimmt. Die Ergebnisse sind in den Tabellen 4 bis 6 dargestellt. Ausserdem wurde die Wasseraufnahme der Fischer-Riegel nach einstündiger Wasserlagerung ermittelt.

15 Tabelle 4: Variation der Temperatur, Bindemittelmenge und Bindemittelart

	Versuch	Einsatzstoff <sup>1)</sup> [g]		T [°C] <sup>2)</sup>	BF 23°C [N/cm <sup>2</sup> ] <sup>4)</sup>	BF heiss [N/cm <sup>2</sup> ] <sup>5)</sup>
20	VM1 (Ver- gleich)	MSA	60	200	n.b. <sup>3)</sup>	n.b.
	M1	MHA	30	130	70	30
	M2	MHA	30	150	130	30
25	M3	MHA	30	170	135	70
	M4	MHA	30	200	140	70
	M5	MHA	60	170	200	150
30	M6	MHA	90	170	115	90
	M7	MHA	60	200	120	80
	M8	MHA	90	200	90	70
35	M9	MSA + (NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	19,8 10,2	200	20	20
	M10	MSA + (NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	39,6 20,4	200	40	40
	M11	MSA + (NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	59,4 30,6	200	60	50
40	M12	Aepfelsäure + (NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> + Triethanolamin	44,4 7,8 6,0	200	1020	750
	M13	Aepfelsäure + (NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> + Triethanolamin	88,8 15,6 12,0	200	>1200	>1300
	VM2 (Ver- gleich)	Citronensäure + Triethanolamin	120 12,0	200	n.B.	n.b.
45	M14	Citronensäure + (NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> + Triethanolamin	48,0 6,0 6,0	200	1050	680

## 33

Versuch	Einsatzstoff <sup>1)</sup> [g]	T [°C] <sup>2)</sup>	BF 23°C [N/cm <sup>2</sup> ] <sup>4)</sup>	BF heiss [N/cm <sup>2</sup> ] <sup>5)</sup>
M15	Citronensäure + (NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> + Triethanolamin	96,0 12,0 12,0	200	>1300
M16	MHA + Triethanolamin	23,0 7,0	170	635

1) MSA = Maleinsäureanhydrid; MHA Maleinsäurehalbamid

2) Ofentemperatur

3) n.b.: Wert nicht bestimmbar, da Probenkörper zerfallen

4) Biegefestigkeit bei 23°C

5) Biegefestigkeit im heissen Zustand nach Entnahme aus dem Ofen

Tabelle 5:

15

Versuch	Bindemittel <sup>1)</sup> [g]	T <sup>2)</sup> [°C]	WA <sup>3)</sup> [%]	BF <sub>nass</sub> <sup>4)</sup> [N/cm <sup>2</sup> ]	BF <sub>trocken</sub> <sup>5)</sup> [N/cm <sup>2</sup> ]
M17	Z6	69,1	170	23,7 23,6	730 710
M18	Z5	72,6	170	23,3 23,4	390 370
M19	Z7	66,1	170	23,7 23,8	480 680
M20	Z8	63,5	170	23,5 23,8	740 760
M21	Z9	61,2	170	23,5 23,7	580 640
M22	Z6	69,1	200	24,1 23,8	1040 970
M23	Z5	72,6	200	25,4 25,2	850 880
M24	Z7	66,1	200	12,8 19,2	1160 1100
M25	Z8	63,5	200	16,5 11,6	1160 1200
M26	Z9	61,2	200	23,0 23,0	980 1000
M27	Z6	69,1	150	25,8 25,6	220 230

40

1) Z5 Maleinsäureammoniumsalz + Triethanolamin im Gew.-Verhältnis 5:1 als wässrige Lösung

Z6 Maleinsäureammoniumsalz + Triethanolamin im Gew.-Verhältnis 10:1 als wässrige Lösung

Z7 Maleinsäureammoniumsalz + Triethanolamin im Gew.-Verhältnis 10:3 als wässrige Lösung

## 34

Z8 Maleinsäureammoniumsalz + Triethanolamin im Gew.-Verhältnis 2,5:1 als wässrige Lösung

Z9 Maleinsäureammoniumsalz + Triethanolamin im Gew.-Verhältnis 2:1 als wässrige Lösung

- 5 2) Ofentemperatur  
3) Wasseraufnahme nach 60 min  
4) Biegefestigkeit in nassem Zustand (Doppelbestimmung)  
5) Biegefestigkeit in trockenem Zustand bei 23°C

10 Ausserdem wurden die folgenden oligomeren Bindemittel Z10 bis Z14 hergestellt und als Bindemittel für Quarzsand getestet:

Herstellung von Z10:

- 15 In einem Glaskolben wurde Maleinsäurehalbamid mittels eines 150°C heissen Ölbad bis zum Einsetzen einer exothermen Reaktion (erkennbar an einer spontanen orange-Färbung) aufgeschmolzen. Der Kolben wurde in flüssigem Stickstoff abgekühlt, zerschlagen und der Kolbeninhalt in Wasser aufgenommen. Man erhielt eine 50  
20 gew.-%ige wässrige Lösung des Bindemittels.

Herstellung von Z11:

- Die Herstellung erfolgte ähnlich wie von Z12, jedoch liess man  
25 das Maleinsäurehalbamid weitere 30 min. bei 150°C reagieren. Man erhielt eine 50 gew.-%ige wässrige Lösung des Bindemittels.

Herstellung von Z12:

- 30 In einem Glaskolben wurde eine Mischung aus Maleinsäurehalbamid und Triethanolamin im Gewichtsverhältnis 5:1 mittels eines 150°C heissen Ölbad bis zum Einsetzen einer exothermen Reaktion (s.o.) aufgeschmolzen. Der Kolben wurde in flüssigem Stickstoff abgekühlt, zerschlagen und der Kolbeninhalt in Wasser aufgenommen.  
35 Man erhielt eine 50 gew.-%ige wässrige Lösung des Bindemittels.

Herstellung von Z13:

- In einem Glaskolben wurden 5 Gewichtsteile Maleinsäurehalbamid  
40 mittels eines 150°C heissen Ölbad bis zum Einsetzen einer exothermen Reaktion (s.o.) aufgeschmolzen. Dann gab man 1 Gew.-Teil Triethanolamin zu, schreckte den Kolben in flüssigem Stickstoff ab, zerschlug den Kolben und nahm den Kolbeninhalt in Wasser auf. Man erhielt eine 50 gew.-%ige wässrige Lösung des Bindemittels.

45

## 35

## Herstellung von Z14:

Die Herstellung erfolgte ähnlich wie von Z13, jedoch liess man das Maleinsäurehalbamid vor der Triethanolamin-Zugabe zunächst 30 min. bei 150°C reagieren. Man erhielt eine 50 gew.-%ige wässrige Lösung des Bindemittels.

Die Bindemittel Z10 bis Z13 wurden mit 450 g Quarzsand F34 in den in Tabelle 6 angegebenen Mengenverhältnissen gemischt und zu Fischenriegeln verarbeitet. Die Eigenschaften der erhaltenen Riegel sind ebenfalls in Tabelle 6 angegeben. Die Messmethoden entsprechen den unter IV angegebenen Methoden.

Tabelle 6:

15

Versuch	Bindemittel <sup>1)</sup> [g]		T <sup>2)</sup> [°C]	WA <sup>3)</sup> [%]	BF <sub>nass</sub> <sup>4)</sup> [N/cm <sup>2</sup> ]	BF <sub>trocken</sub> <sup>5)</sup> [N/cm <sup>2</sup> ]
M28	Z10	90	200	n.b.	n.b. <sup>6)</sup>	90
M29	Z12	90	200	21,5	110	560
20 M30	Z10 + Z13	30 450	200	15,1	640	810
M31	Z11 + Z14	72,6 450	170	11,8	990	1190

1) Bindemitteltyp siehe Herstellungsbeispiele

25 2) Ofentemperatur

3) Wasseraufnahme nach 60 min

4) Biegefestigkeit in nassem Zustand (Doppelbestimmung)

5) Biegefestigkeit in trockenem Zustand bei 23°C

30

35

40

45

## Patentansprüche

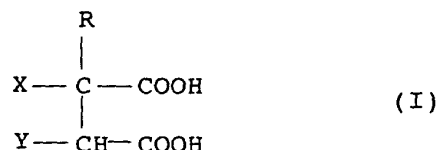
## 1. Verwendung von Zusammensetzungen, enthaltend:

5

- wenigstens ein Umsetzungsprodukt aus

i. wenigstens einer Polycarbonsäure der allgemeinen Formel I:

10



15

worin

R für Wasserstoff oder eine Gruppe  $\text{CH}_2\text{COOH}$  steht,

X OH oder  $\text{NH}_2$  bedeutet, wenn Y für Wasserstoff steht,

20

Y OH oder  $\text{NH}_2$  bedeutet, wenn X für Wasserstoff steht, oder

X und Y gemeinsam für eine  $\pi$ -Bindung stehen,

und/oder einem Anhydrid der Polycarbonsäure I mit

25

ii. Ammoniak und gegebenenfalls

iii. primären Aminen und/oder Verbindungen mit wenigstens zwei Hydroxylgruppen; und/oder

30

- eine Mischung aus wenigstens einer Polycarbonsäure der allgemeinen Formel I und/oder ihrem Anhydrid und wenigstens einer beim Erwärmen Ammoniak freisetzenden Substanz und gegebenenfalls primären Aminen und/oder Verbindungen mit wenigstens zwei Hydroxylgruppen;

35

als termisch härtbares Bindemittel zur Herstellung von Formkörpern aus feinteiligen Materialien und zum Verfestigen von Flächengebilden aus Fasermaterialien.

40

## 2

2. Verwendung nach Anspruch 1, wobei das Umsetzungsprodukt der Komponenten i und ii ausgewählt ist unter den Mono- und Diamiden, den Mono- und Diammoniumsalzen sowie den Monoamid-Ammoniumsalzen der Maleinsäure und der Fumarsäure.

5

3. Verwendung nach Anspruch 1 oder 2, wobei das Umsetzungsprodukt ein wasserlösliches Oligomer ist, welches durch Erwärmen eines Mono- oder Diamids, eines Mono- oder Diammoniumsalzes oder eines Monoamid-Ammoniumsalzes einer Polycarbonsäure der Formel I erhältlich ist.

10

4. Verwendung nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Zusammensetzung zusätzlich ein feinteiliges Polymerisat ethylenisch ungesättigter Monomere enthält.

15

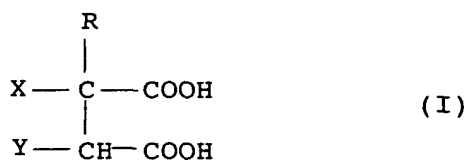
5. Verwendung nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Zusammensetzung zusätzlich wenigstens eine Verbindung mit wenigstens zwei Hydroxylgruppen enthält.

- 20 6. Thermisch härtbare Zusammensetzung, enthaltend:

- wenigstens ein Umsetzungsprodukt aus

- 25 i. wenigstens einer Polycarbonsäure der allgemeinen Formel I:

25



30

worin

R für Wasserstoff oder eine Gruppe  $\text{CH}_2\text{COOH}$  steht,

X OH oder  $\text{NH}_2$  bedeutet, wenn Y für Wasserstoff steht,

35

Y OH oder  $\text{NH}_2$  bedeutet, wenn X für Wasserstoff steht, oder

X und Y gemeinsam für eine  $\pi$ -Bindung stehen,

40

und/oder einem Anhydrid der Polycarbonsäure I mit

ii. Ammoniak und gegebenenfalls

iii. primären Aminen und/oder Verbindungen mit wenigstens zwei Hydroxylgruppen; und/oder

45

## 3

- eine Mischung aus wenigstens einer Polycarbonsäure der allgemeinen Formel I und/oder ihrem Anhydrid und wenigstens einer beim Erwärmen Ammoniak freisetzenden Substanz und gegebenenfalls primären Aminen und/oder Verbindungen mit wenigstens zwei Hydroxylgruppen;
  - wenigstens einen weiteren Bestandteil, ausgewählt unter feinteiligen Polymerisaten ethylenisch ungesättigter Monomere, Verbindungen mit wenigstens zwei Hydroxylgruppen und polymeren Polycarbonsäuren.
7. Zusammensetzung nach Anspruch 6, wobei das Umsetzungsprodukt ausgewählt ist unter den Mono- und Diamiden, den Mono- und Diammoniumsalzen sowie den Monoamid-Ammoniumsalzen der Maleinsäure und der Fumarsäure.
8. Verfahren zur Herstellung von Formkörpern aus feinteiligen Materialien, dadurch gekennzeichnet, dass man das feinteilige Material mit einer Zusammensetzung gemäss Anspruch 1 imprägniert oder vermischt und die so erhaltene Mischung bei Temperaturen oberhalb 120°C formt.
9. Verfahren nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, dass man das Bindemittel in einer Menge von 2 Gew.-% bis 100 Gew.-%, bezogen auf 100 Gew.-% feinteiliges Material einsetzt.
10. Verfahren nach einem der Ansprüche 8 oder 9, dadurch gekennzeichnet, dass man das Bindemittel als Pulver einsetzt.
11. Verfahren nach einem der Ansprüche 8 bis 10, dadurch gekennzeichnet, dass das feinteilige Material in Form von Fasern, Spänen, Schnitzeln oder körnigen Materialien eingesetzt wird.
12. Verfahren zum Verfestigen von Flächengebilden aus Fasermaterialien, dadurch gekennzeichnet, dass man ein unverfestigtes Flächengebilde aus Fasermaterialien mit einer Zusammensetzung gemäss einem der Ansprüche 1 bis 5 behandelt und anschliessend auf Temperaturen oberhalb 120°C erwärmt.
13. Verfahren nach Anspruch 12, dadurch gekennzeichnet, dass man die Zusammensetzung in Form einer wässrigen Lösung oder Dispersion einsetzt.
14. Formkörper, erhältlich durch ein Verfahren gemäss Anspruch 8.
15. Flächengebilde, erhältlich durch ein Verfahren gemäss Anspruch 12.



## Zusammenfassung

Die vorliegende Erfindung betrifft die Verwendung von Zusammensetzungen, die Umsetzungsprodukte von niedermolekularen Di oder Tricarbonsäuren mit Ammoniak enthalten, zur Herstellung von Formkörpern aus feinteiligen Materialien.

10

15

20

25

30

35

40

45